

# Literaturrecherche zur Auslaugkinetik von zementgebundenen Baustoffen

**T 3300**

T 3300

Dieser Forschungsbericht wurde mit modernsten Hochleistungskopierern auf Einzelanfrage hergestellt.

Die in dieser Forschungsarbeit enthaltenen Darstellungen und Empfehlungen geben die fachlichen Auffassungen der Verfasser wieder. Diese werden hier unverändert wiedergegeben, sie geben nicht unbedingt die Meinung des Zuwendungsgebers oder des Herausgebers wieder.

Die Originalmanuskripte wurden reprototechnisch, jedoch nicht inhaltlich überarbeitet. Die Druckqualität hängt von der reprototechnischen Eignung des Originalmanuskriptes ab, das uns vom Autor bzw. von der Forschungsstelle zur Verfügung gestellt wurde.

© by Fraunhofer IRB Verlag

2013

ISBN 978-3-8167-9013-6

Vervielfältigung, auch auszugsweise,  
nur mit ausdrücklicher Zustimmung des Verlages.

**Fraunhofer IRB Verlag**

Fraunhofer-Informationszentrum Raum und Bau

Postfach 80 04 69

70504 Stuttgart

Nobelstraße 12

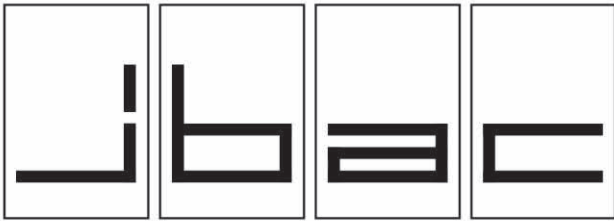
70569 Stuttgart

Telefon (07 11) 9 70 - 25 00

Telefax (07 11) 9 70 - 25 08

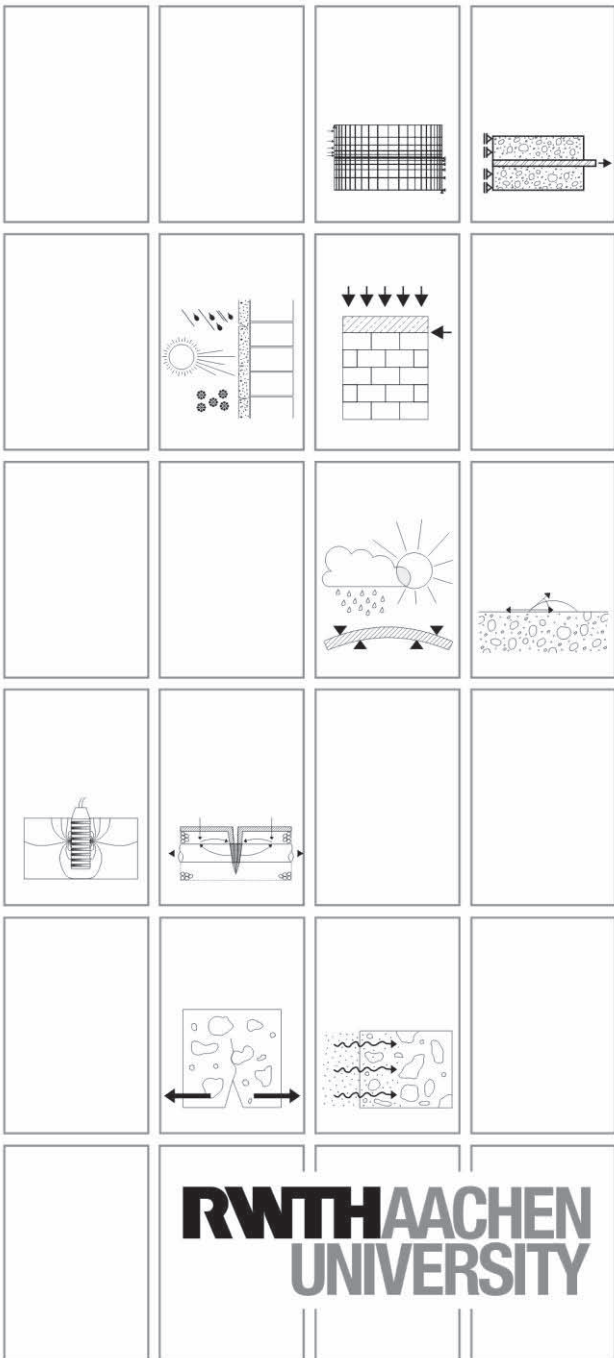
E-Mail [irb@irb.fraunhofer.de](mailto:irb@irb.fraunhofer.de)

[www.baufachinformation.de](http://www.baufachinformation.de)



INSTITUT FÜR BAUFORSCHUNG AACHEN

FORSCHUNG · ENTWICKLUNG  
ÜBERWACHUNG  
PRÜFUNG · BERATUNG



## Forschungsbericht F 7091

Literaturrecherche zur Auslaugkinetik  
von zementgebundenen Baustoffen

**RWTH**AACHEN  
UNIVERSITY

Lin/Fk

2. Ausfertigung

## THEMA

Literaturrecherche zur Auslaugkinetik von  
zementgebundenen Baustoffen

**Forschungsbericht Nr.**

F 7091  
vom 10.04.2012

**Projektbearbeitung**

Univ.-Prof. Dr.-Ing. W. Brameshuber

M. Sc. X. Lin

Dipl.-Ing. A. Vollpracht

**Auftraggeber/Förderer**

Deutsches Institut für Bautechnik  
Kolonnenstr. 30 B  
10829 Berlin

**Vertragsdatum/Auftragsbestätigung**

13.12.2010

**Ihr Aktenzeichen**

P 52-5-20.64-1379/11

Dieser Bericht umfasst 85 Seiten, davon 59 Textseiten.

Soweit Versuchsmaterial nicht verbraucht ist, wird es nach 4 Wochen vernichtet. Eine längere Aufbewahrung bedarf einer schriftlichen Vereinbarung. Die auszugsweise Veröffentlichung dieses Berichtes, seine Verwendung für Werbezwecke sowie die inhaltliche Übernahme in Literaturdatenbanken bedürfen der Genehmigung des ibac.

INHALTSVERZEICHNIS		Seite
1	EINLEITUNG .....	1
2	DATENBANK ZUM LANGZEITSTANDTEST.....	2
2.1	Literatursichtung .....	2
2.2	Struktur der Datenbank.....	2
3	BESCHREIBUNG DER AUSLAUGMECHANISMEN.....	3
4	MATHEMATISCHE BESCHREIBUNG DER AUSLAUGKINETIK.....	3
4.1	Auswaschung.....	3
4.2	Auflösung.....	4
4.3	Diffusion.....	4
4.3.1	Allgemeines .....	4
4.3.2	Basis-Modell: Platten-Modell.....	5
4.3.3	Einfaches Zwei-Phasen-Modell.....	6
4.3.4	Zwei-Phasen-Modell mit zwei Diffusionskoeffizienten und einer Grenzfläche.....	10
4.4	Sorption und Reaktion .....	15
5	AUSWERTUNGSVERFAHREN FÜR DEN LANGZEITSTANDTEST .....	15
6	AUSWERTUNG DER DATENBANK.....	19
6.1	Übersicht.....	19
6.2	Abgleich der Datenbank mit dem niederländischen Baustoffmonitoring .....	23
6.3	Auswertung der Datenbank im Hinblick auf die Auslaugkinetik.....	24

7	BESCHREIBUNG DER KONZEPTE ZUR BEWERTUNG DER AUSLAUGUNG IM LANGZEITSTANDTEST .....	27
7.1	DIBt-Bewertungskonzept .....	27
7.1.1	Allgemeines .....	27
7.1.2	Extrapolation und Umrechnung der Freisetzungsrates .....	28
7.1.3	Simulation der Stoffausbreitung mit Hilfe von numerischen Transportmodellen .....	30
7.1.4	Ableitung von zulässigen Freisetzungen im Langzeitstandtest .....	39
7.2	Niederländisches Bewertungskonzept .....	40
8	ÜBERPRÜFUNG DER MODELLRECHNUNGEN NACH DIBT-KONZEPT .....	46
8.1	Allgemeines .....	46
8.2	Durchgeführte Transportsimulationen .....	48
9	ZUSAMMENFASSUNG .....	51
10	AUSBLICK .....	52
11	LITERATUR .....	53
	TABELLEN .....	A1-A4
	BILDER .....	B1-B22

## 1 EINLEITUNG

Um eine schädliche Bodenveränderung und eine Grundwasserverunreinigung beim Einsatz eines neuen Baustoffs auszuschließen, wurde das Grundsatzpapier „Grundsätze zur Bewertung der Auswirkungen von Bauprodukten auf Boden und Grundwasser“ /DIB11/ beim Deutschen Institut für Bautechnik (DIBt) erarbeitet. Im Teil II, Kapitel „Betonausgangsstoffe und Beton“, wird ein Bewertungskonzept für zementgebundene Baustoffe festgelegt. Dieses Bewertungskonzept für Festbeton basiert auf dem Langzeitstandtest gemäß DAfStb-Richtlinie /DAf05/. Die Feststellung der maximalen zulässigen Freisetzung erfolgte anhand von Transportmodellierungen im Grundwasser. Das verwendete Modellgebiet ist in /DIB11/ beschrieben. In dem Modell wurden einige Randbedingungen bzw. Modellparameter (z. B. Bauwerksabmessungen, Bodenbeschaffenheit etc.) festgelegt, die im Rahmen dieses Projektes noch einmal erläutert werden sollen. Beim Schadstoffeintrag in das Modellgebiet wurde von einer diffusionsgesteuerten Auslaugung mit einem zeitlich konstanten Diffusionskoeffizienten ausgegangen. Allerdings zeigen zahlreiche vorliegende Ergebnisse von Standtests, dass die Freisetzung aus Beton häufig schneller abklingt als es bei einer diffusionsgesteuerten Auslaugung mit konstantem Diffusionskoeffizienten der Fall wäre. Es sollte hier eine „worst case“-Bedingung gewählt werden.

Die Konzentrationen der umweltrelevanten Parameter im Grundwasser dürfen die Geringfügigkeitsschwellen (GFS) der Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA) /LAW04/ am Ort der Beurteilung nicht überschreiten. Gemäß GAP-Papier (Grundsätze des vorsorgenden Grundwasserschutzes bei Abfallverwertung und Produkteinsatz, /LAW02/) ist der Ort der Beurteilung bei einem im Grundwasser eingebauten Bauprodukt die Grenzschicht zwischen dem Bauteil und dem Grundwasser. Eine kurzzeitige Überschreitung der GFS in der dünnen Grenzschicht wird als geringfügig betrachtet. Daher darf die Konzentration im Grundwasser beim o. g. Bewertungskonzept kleinräumig (Schichtdicke 2 m) sowie kurzzeitig (Zeitraum 6 Monate) gemittelt werden.

Im Rahmen dieses Projektes wurden Prüfdaten aus der Literatur gesammelt und ausgewertet, um die Auslaugkinetik realitätsnäher zu beschreiben. Anhand von Transportmodellierungen wird festgestellt, ob sich die mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration beim Ansatz der realitätsnäheren Auslaugkinetik verändert, bzw. welche Sicherheiten hier im Konzept enthalten sind.

Ergänzend dazu wurde das deutsche Bewertungskonzept im Rahmen dieses Projektes mit dem niederländischen Konzept /SQD07/ verglichen.

## 2 DATENBANK ZUM LANGZEITSTANDTEST

### 2.1 Literatursichtung

In dieser Literaturrecherche wurden Ergebnisse von Langzeitstandtestes an 42 Betonen und 24 Mörteln aus umfangreichen Forschungs- und Materialprüfungsprojekten, die im Zeitraum von 1995 bis 2010 durchgeführt wurden, zusammengestellt. Ausgewertet wurden die folgenden Quellen: /Sch95, Slo01, Bra04, Bra05b, DIB05, Mar05, Ran06a, Ran06b, Ran07, Ric11/. Die Untersuchungen umfassen 23 verschiedene Zemente, 12 Flugaschen (mit oder ohne Mitverbrennung von sekundären Brennstoffen), 4 Kesselsande, 3 Fließmittel und 3 Recyclingmaterialien. Alle in /LAW04/ definierten, umweltrelevanten anorganischen Parameter sowie pH-Wert, elektrische Leitfähigkeit, Redoxpotential, Natrium, Kalium, Triethanolamin und TOC (Total Organic Carbon) sind in der Datenbank aufgeführt. Die wichtigsten variierten Randbedingungen sind in Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1: Übersicht der wichtigsten Randbedingungen

Parameter	Einheit	Spannweite
1	2	3
w/z <sub>eq</sub>	-	0,4 - 0,6
V/O	l/m <sup>2</sup>	40 - 120
Vorlagerungszeit	d	28 - 360
Laufzeit des Standtests	d	14 - 84
pH-Wert (Blindwert des Eluenten)	-	4 - 10

### 2.2 Struktur der Datenbank

Die Datensammlung erfolgte mit Hilfe von MS-Excel. Die Datei „Rohdaten“ enthält im Arbeitsblatt „Allgemeines“ die wichtigen Grundinformationen (wie z. B. Quellen, Richtlinien), die Prüfbedingungen (wie z. B. Abmessung, Eluent / Oberflächen-Verhältnis, Vorlagerungszeit und -klima, Versuchslaufzeit, Intervalle der Wasserwechsel) und Informationen zur Mischungszusammensetzung (Art und Gehalt von Zementen, Zusatzstoffen, Zusatzmitteln Gesteinskörnungen und Wasser). Die Ergebnisse der Eluatanalysen des Standtests und ggf. die Blindwerte sind in separaten Arbeitsblättern sortiert nach umweltrelevanten Parametern enthalten. Die Auswertung der gesammelten Daten erfolgte in separaten, stoffspezifischen Excel-Dateien.



### **3 BESCHREIBUNG DER AUSLAUGMECHANISMEN**

Für die Freisetzung der Spurenelemente aus zementgebundenen Materialien sind folgende Mechanismen zu betrachten /Hoh02, Slo87/:

- wash-off-Effekt: Leichtlösliche Substanzen, die sich auf der Oberfläche des Probekörpers befinden, können beim ersten Kontakt mit dem Eluenten abgewaschen werden. Diese Freisetzung ist bei Langzeitstandtests bereits nach kurzer Zeit beendet.
- Auflösung: Sind Komponenten der Matrix in dem Eluenten löslich, so kommt es zu einer kontinuierlichen Auflösung von außen nach innen.
- Diffusion: Aufgrund des Konzentrationsgradienten zwischen der Porenlösung und dem Eluenten wird der gelöste Stoff durch thermische Eigenbewegung von dem Bereich mit hoher Konzentration zum Bereich mit niedriger Konzentration transportiert.
- Sorption: Der betrachtete Parameter kann an äußeren und inneren Oberflächen des Probekörpers adsorbieren bzw. desorbieren. Es tritt eine Wechselwirkung bzw. ein Gleichgewicht zwischen adsorbierten und gelösten Stoffen auf. Bei der Auslaugung können sich adsorbierte Stoffe aufgrund einer sinkenden Porenlösungskonzentration lösen. Die adsorbierten Stoffe können als Puffer wirken.
- Reaktion: Während des Auslaugprozesses können chemische Reaktionen auftreten. Dies kann unterschiedliche Ursachen haben. Zum einen hydratisiert der Probekörper während des Standtests weiter. Zum anderen werden durch die Auslaugung die Randbedingungen, wie z. B. pH-Wert, Redoxpotential oder die Konzentrationen anderer Parameter in der Porenlösung der ausgelaugten Zone verändert. Daher kann eine Umwandlung der Erscheinungsform des betrachteten Stoffs auftreten, was zu einer Änderung der Auslaugkinetik führen kann.

## **4 MATHEMATISCHE BESCHREIBUNG DER AUSLAUGKINETIK**

### **4.1 Auswaschung**

Die Auswaschung bzw. der wash-off-Effekt ist eine kurzzeitige Freisetzung. Sie erfolgt unmittelbar bei Wasserkontakt. Die kumulative Freisetzung wird daher idalerweise als eine Konstante angesehen (s. Gleichung (1)). Nach der anfänglichen Freisetzung ist die Freisetzungsrates Null.

$$E_A = a \quad (1)$$

$E_A$ : kumulative Freisetzung durch wash-off-effect, in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$a$ : Konstante, in  $\text{mg}/\text{m}^2$

## 4.2 Auflösung

Wenn der Eluent kontinuierlich erneuert wird, oder wenn die Eluatkonzentration während der Auslaugung im Vergleich zu der Sättigungskonzentration klein bleibt, kann die Freisetzungsrage bei einer kontinuierlichen Auflösung annähernd als eine Konstante angesehen werden. Die kumulative Freisetzung nimmt linear mit der Zeit zu (s. Gleichung (2)).

$$E_L = J_L \cdot t \quad (2)$$

$E_L$ : kumulative Freisetzung bei Auflösung in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$t$ : Zeit in s

$J_L$ : Auslaugrate bei Auflösung in  $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$  (konstant)

## 4.3 Diffusion

### 4.3.1 Allgemeines

Diffusionsprozesse werden mit den Fick'schen Gesetzen beschrieben. Demnach ist die Freisetzungsgeschwindigkeit bzw. Freisetzungsrage proportional zum Konzentrationsgradienten (1. Fick'sches Gesetz):

$$J_D = -D \frac{\partial c}{\partial x} \quad (3)$$

$J_D$ : Auslaugrate bei Diffusion in  $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$

$D$ : Diffusionskoeffizient in  $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$

$c$ : Konzentration in  $\text{mg}/\text{m}^3$

$x$ : Position in m

Die Freisetzungsrage beschreibt den Stoffstrom während der Freisetzung. Durch diesen Stofftransport ändert sich die Konzentrationsverteilung im System (2. Fick'sches Gesetz):

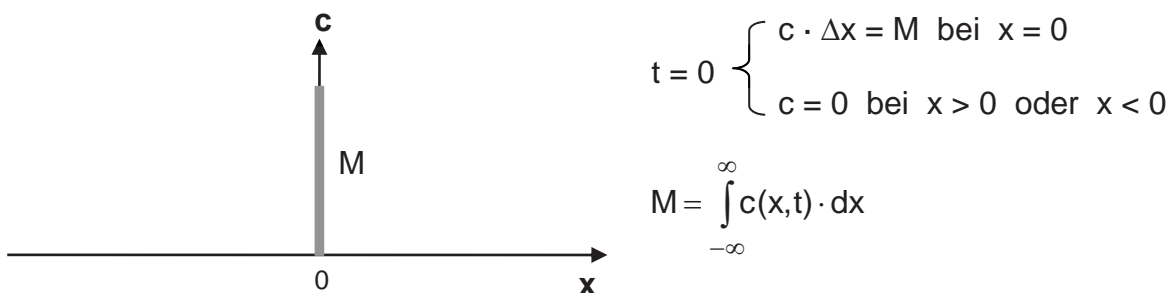
$$\frac{\partial c}{\partial t} = - \frac{\partial J_D}{\partial x} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (4)$$

t: Zeit in s

Die Konzentrationsverteilung in einem System wird unter Berücksichtigung der Randbedingungen mathematisch abgeleitet. In diesem Bericht werden die Modelle eindimensional analysiert.

### 4.3.2 Basis-Modell: Platten-Modell

Zu Beginn des Diffusionsprozesses ist die diffundierende Substanz bei diesem Modell in einer beliebigen Menge  $M$  an einem Punkt konzentriert (s. Bild 1) /Cra79/.

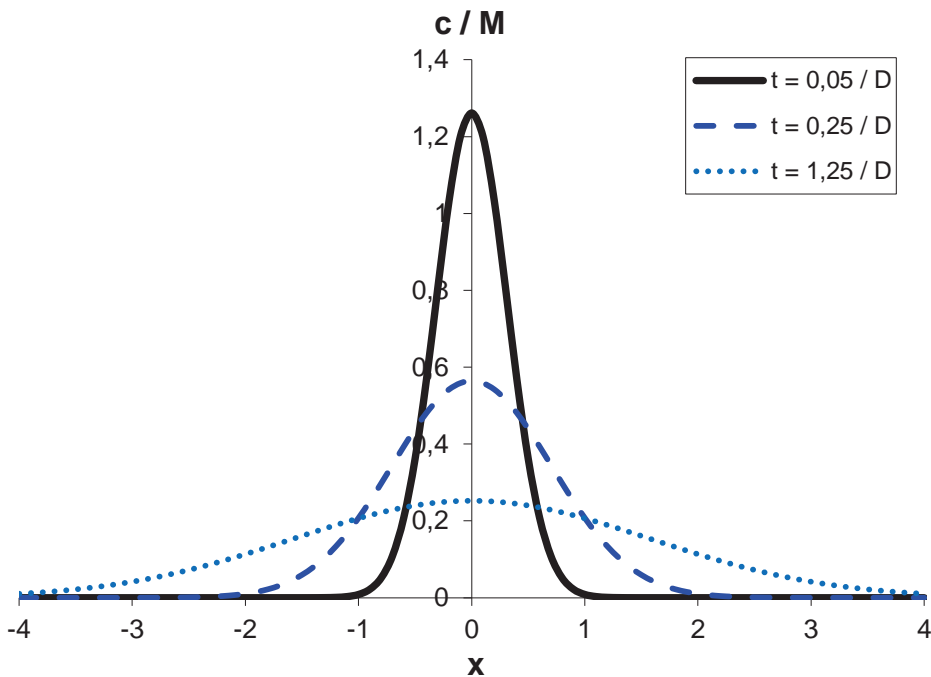


**Bild 1:** Schematische Darstellung des Plattenmodells bei Zeit  $t = 0$  ( $M$ : Stoffmenge (konstant),  $c$ : Konzentration bzw. Konzentrationsverteilung des betrachteten Stoffs,  $x$ : Position)

Wenn der Diffusionskoeffizient  $D$  konstant ist, so ergibt sich aus den Fick'schen Gesetzen folgende Beschreibung der orts- und zeitabhängigen Konzentration /Cra79/:

$$c(x,t) = \frac{M}{2\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} e^{-x^2 / (4 \cdot D \cdot t)} \quad (5)$$

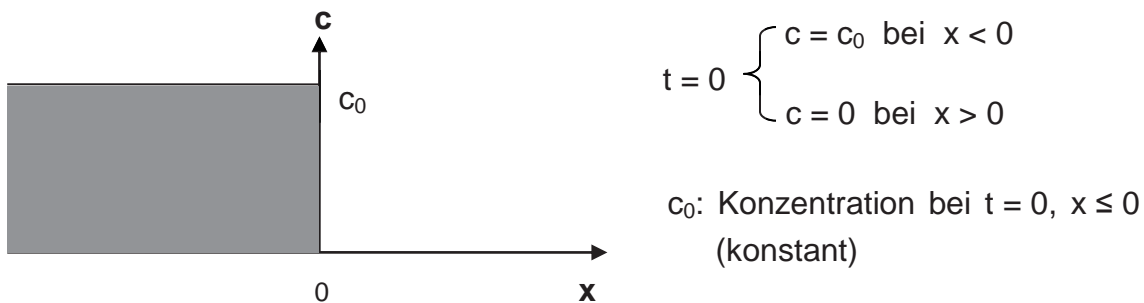
Bild 2 zeigt, wie die Substanz mit der Zeit diffundiert und wie sich die Konzentrationsverteilung ändert.



**Bild 2:** Schematische Darstellung der Konzentrationsverteilung von Platte Modell bei unterschiedlichen Zeitpunkten

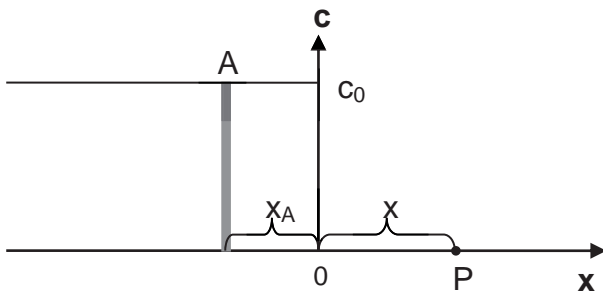
### 4.3.3 Einfaches Zwei-Phasen-Modell

Die Auslaugung aus einem kompakten Bauteil kann in erster Näherung mit zwei unendlichen Phasen beschrieben werden. Die Situation zu Beginn der Auslaugung ist in Bild 3 dargestellt:



**Bild 3:** Schematische Darstellung der Konzentration bei  $t = 0$

Der Punkt  $x = 0$  ist die Phasengrenze zwischen Beton und Wasser. Die Phase bei  $x \leq 0$  wird als Quelle mit der Konzentration  $c_0$  definiert, und die Phase bei  $x > 0$  als Eluent mit der Konzentration Null. Die Quelle kann in unzählige Platten unterteilt werden. Eine beliebige Platte A (in Position  $(-x_A)$ ) und ein beliebiger Punkt P (in Position  $x$ ) sind im Bild 4 dargestellt.



**Bild 4:** Schematische Darstellung von der Platte A und der Punkt P bei  $t = 0$

Die gesamte Stoffmenge in Platte A ist  $\Delta x \cdot c_0$ . Die Entfernung zwischen Platte A und Position P beträgt  $x_A + x$ . Die von der aus dieser Platte A diffundierende Substanz verursachte Konzentration  $c_A$  bei P kann analog Gleichung (5) wie folgt beschrieben werden:

$$c_A(x, t) = \frac{c_0 \cdot \Delta x}{2\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} e^{-(x_A + x)^2 / (4 \cdot D \cdot t)} \quad (6)$$

Die Konzentration an Punkt P ist eine Summe bzw. ein Integral von der aus allen Platten diffundierenden Substanz, d. h.  $x_A = 0$  bis  $\infty$ .

$$c(x, t) = \frac{c_0}{2\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} \int_0^{\infty} e^{-(x_A + x)^2 / (4 \cdot D \cdot t)} \cdot dx_A \quad (7)$$

Mit  $\eta = \frac{x_A + x}{2\sqrt{D \cdot t}}$  kann Gleichung (7) wie folgt vereinfacht werden:

$$c(x, t) = \frac{c_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2\sqrt{D \cdot t}}}^{\infty} e^{-\eta^2} \cdot d\eta \quad (8)$$

Durch Integration ergibt sich Gleichung (9), /Cra79/.

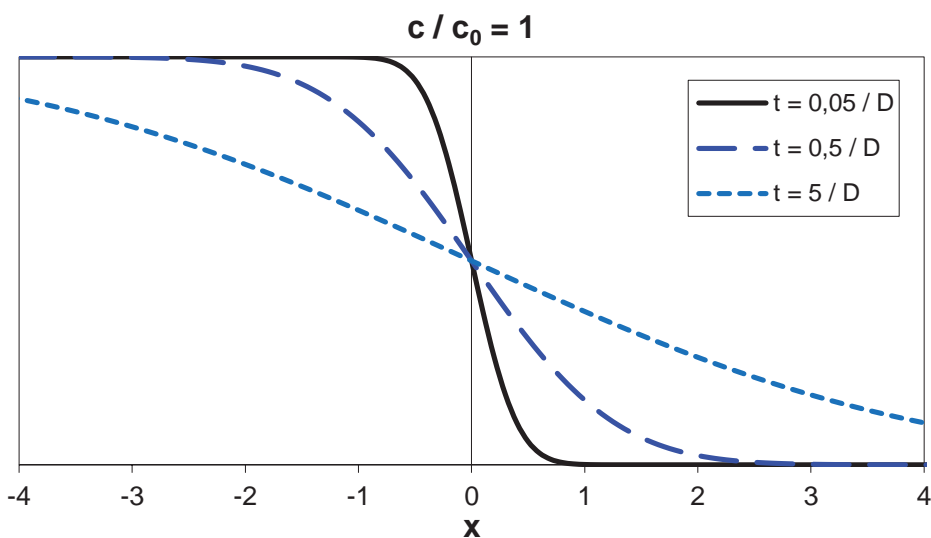
$$c(x, t) = \frac{c_0}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D \cdot t}}\right) \quad (9)$$

Die Definition der Fehlerfunktion ist:

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-\delta^2} \cdot d\delta \quad (10)$$

$$\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} e^{-\delta^2} \cdot d\delta = 1 - \operatorname{erf}(x) \quad (11)$$

Die Konzentrationsverteilung ist im Bild 5 dargestellt. Das Bild zeigt, dass die Konzentration an  $x = 0$  immer  $c_0/2$  beträgt.



**Bild 5:** Schematische Darstellung der Konzentrationsverteilung bei unterschiedlichen Zeitpunkten

Die kumulative Freisetzung ist definiert als die Summe der von  $x \leq 0$  nach  $x > 0$  diffundierenden Stoffmenge. Die Diffusionsgeschwindigkeit bei  $x = 0$  entspricht der Freisetzungsrage. Es gilt:

$$E(t) = \int_0^{\infty} \frac{c_0}{2} \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D \cdot t}}\right) \cdot dx = c_0 \cdot \sqrt{\frac{D \cdot t}{\pi}} \quad (12)$$

$$J(t) = J(x = 0, t) = -D \cdot \left. \frac{\partial c}{\partial x} \right|_{x=0} = \frac{c_0}{2} \cdot \sqrt{\frac{D}{\pi \cdot t}} \quad (13)$$

E: kumulative Freisetzung

J: Freisetzungsrage

$c_0$ : Anfangskonzentration in Diffusionsquelle (konstant)

D: Diffusionskoeffizient (konstant)

t: Zeit

x: Position bzw. Entfernung von Grenzschicht

Zur Auswertung der Standtests werden die Versuchsergebnisse doppellogarithmisch über der Zeit aufgetragen. Logarithmiert man die Gleichungen (12) und (13), so ergeben sich die folgenden Geradengleichungen mit den charakteristischen Steigungen von 0,5 bzw. -0,5.

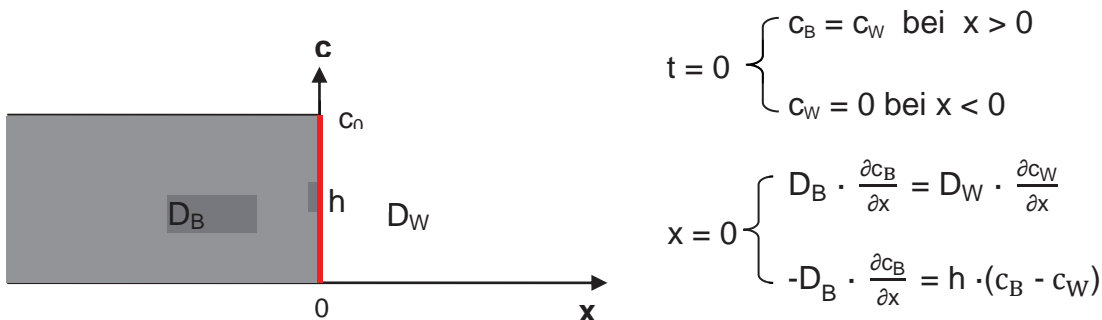
$$\lg(E) = \frac{\lg(t)}{2} + \lg\left(c_0 \cdot \sqrt{\frac{D}{\pi}}\right) = \frac{\lg(t)}{2} + n_1 \quad (14)$$

$$\lg(J) = -\frac{\lg(t)}{2} + \lg\left(\frac{c_0 \cdot \sqrt{D}}{2\sqrt{\pi}}\right) = -\frac{\lg(t)}{2} + n_2 \quad (15)$$

$n_1, n_2$ : Konstanten

#### 4.3.4 Zwei-Phasen-Modell mit zwei Diffusionskoeffizienten und einer Grenzfläche

Bei dem in Abschnitt 4.3.3 beschriebenen Modell ist der Diffusionskoeffizient in dem System überall gleich und bleibt konstant. Bei der Auslaugung ist jedoch der Diffusionskoeffizient in der Quelle bzw. im Baustoff deutlich geringer als der Diffusionskoeffizient im Eluenten (Wasser). Beispielsweise beträgt der Diffusionskoeffizient von Chlorid im Wasser  $2,03 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ , während er im Beton zwischen  $6 \times 10^{-13}$  und  $6 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  liegt /Geh00/. Dies entspricht einem Faktor von 300 bis 3000. Daher werden im folgenden Modell zwei Diffusionskoeffizienten eingesetzt. Bei  $x \leq 0$  gilt der Diffusionskoeffizient  $D_B$ , und bei  $x > 0$   $D_W$  (s. Bild 6). Beim Einsatz einer Beschichtung oder beim Auftreten einer karbonatisierten, dichteren Oberfläche wird der Stofftransport zwischen Probekörper und Eluent gestört. Zur Abbildung im Modell wird der Parameter  $h$  als Durchlässigkeit der Grenzschicht eingesetzt.



**Bild 6:** Darstellung der Randbedingungen des Modells mit zwei Diffusionskoeffizienten und einer dichten Grenzschicht ( $c_1$ : Konzentration bei  $x < 0$ ,  $c_2$ : Konzentration bei  $x \geq 0$ )

Analog zu /Cra79/ ergeben sich die folgenden Gleichungen für die Konzentrationen im Baustoff und im Eluenten:



$$c_1(x,t) = \frac{c_0}{1 + \sqrt{D_W/D_B}} \left[ 1 + \sqrt{\frac{D_W}{D_B}} \left\{ e^{(\gamma_1^2 \cdot D_B \cdot t - \gamma_1 \cdot x)} \operatorname{erfc} \left( \gamma_1 \sqrt{D_B \cdot t} - \frac{x}{2\sqrt{D_B \cdot t}} \right) - \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{D_B \cdot t}} \right\} \right] \quad (16)$$

$$c_2(x,t) = \frac{c_0}{1 + \sqrt{D_W/D_B}} \left\{ \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{D_W \cdot t}} - e^{(\gamma_2^2 \cdot D_W \cdot t - \gamma_2 \cdot x)} \operatorname{erfc} \left( \frac{x}{2\sqrt{D_W \cdot t}} + \gamma_2 \sqrt{D_W \cdot t} \right) \right\} \quad (17)$$

$$\text{Wobei, } \gamma_1 = \frac{h}{D_B} \left( 1 + \sqrt{\frac{D_B}{D_W}} \right) \quad \gamma_2 = \frac{h}{D_W} \left( 1 + \sqrt{\frac{D_W}{D_B}} \right)$$

$c_0$ : Anfangskonzentration in Diffusionsquelle ( $x \leq 0$ ) (Konstante)

$c_B$ : Konzentration in Diffusionsquelle ( $x \leq 0$ )

$c_W$ : Konzentration im Eluenten ( $x > 0$ )

$D_B$ : Diffusionskoeffizient in Diffusionsquelle ( $x \leq 0$ ) (Konstante)

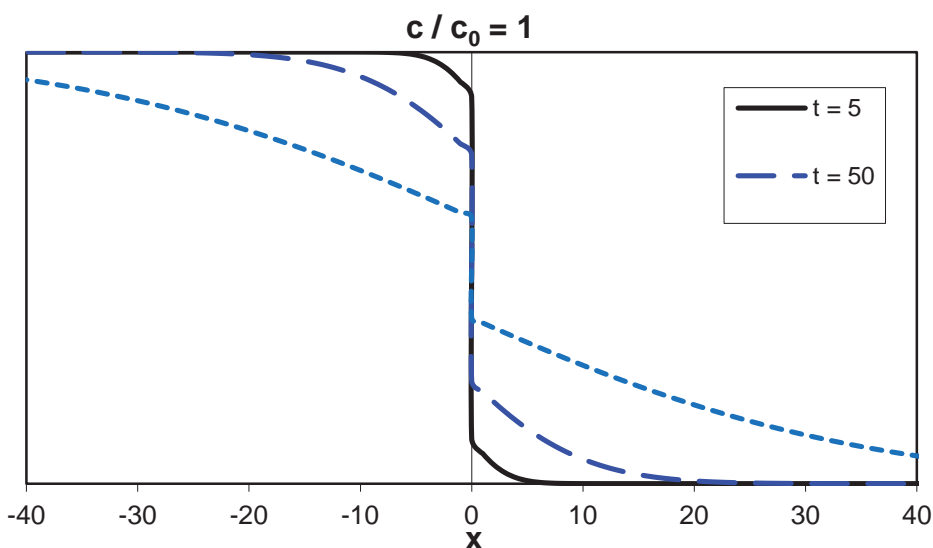
$D_W$ : Diffusionskoeffizient im Eluenten ( $x > 0$ ) (Konstante)

$h$ : Durchlässigkeit der Grenzschicht (Konstante)

$x$ : Position bzw. Entfernung von Grenzschicht

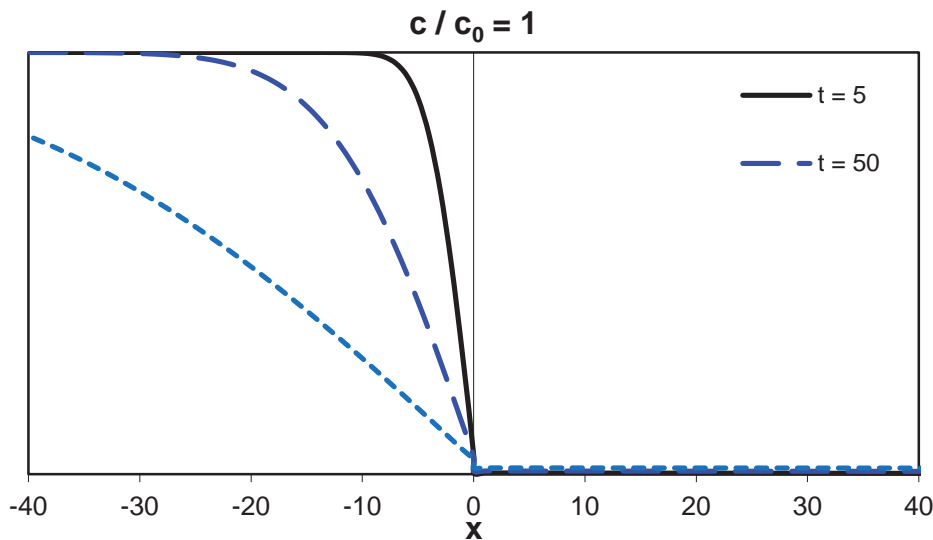
$t$ : Zeit

Wenn die Durchlässigkeit der Grenzschicht klein ist, tritt eine Differenz zwischen den Konzentrationen an den beiden Seiten der Grenzschicht auf (s. Bild 7).



**Bild 7:** Schematische Darstellung der Konzentrationsverteilung bei Modell mit Beschichtung,  $D_B = 1$ ,  $D_W = D_B$ ,  $h = 0,05 \cdot D_B$

Bei der Auslaugung von zementgebundenen Materialien ist der Diffusionskoeffizient im Probekörper viel kleiner als im Eluenten ( $D_B \ll D_W$ ). Daher bleibt die Konzentration im Eluenten überall niedrig, wenn das Verhältnis vom Volumen des Eluenten zur Oberfläche des Probekörpers ausreichend groß ist (s. Bild 8).



**Bild 8:** Schematische Darstellung der Konzentrationsverteilung bei Modell mit Beschichtung,  $D_B = 1$ ,  $D_W = 1600 \cdot D_B$ ,  $h = 0,05 \cdot D_B$

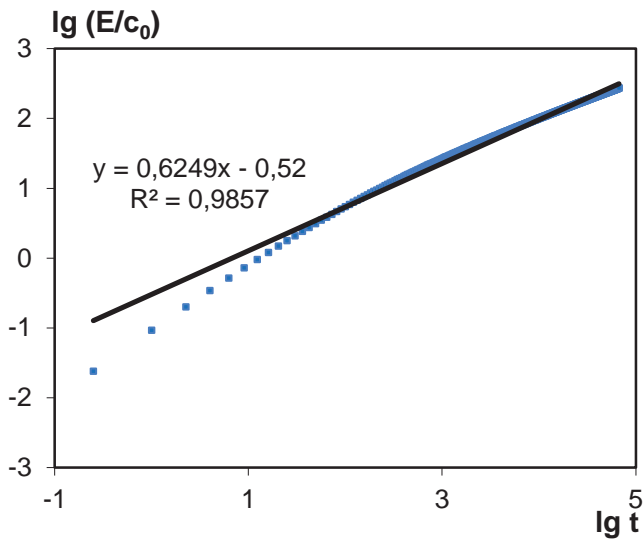
Für die kumulative Freisetzung und die Freisetzungsrate gilt:

$$J = -D \frac{\partial c_B}{\partial x} \Big|_{x=0} = h \cdot c_0 \cdot \operatorname{erfc}(h \cdot k_D \sqrt{t}) \cdot e^{h^2 \cdot k_D^2 \cdot t} \quad (18)$$

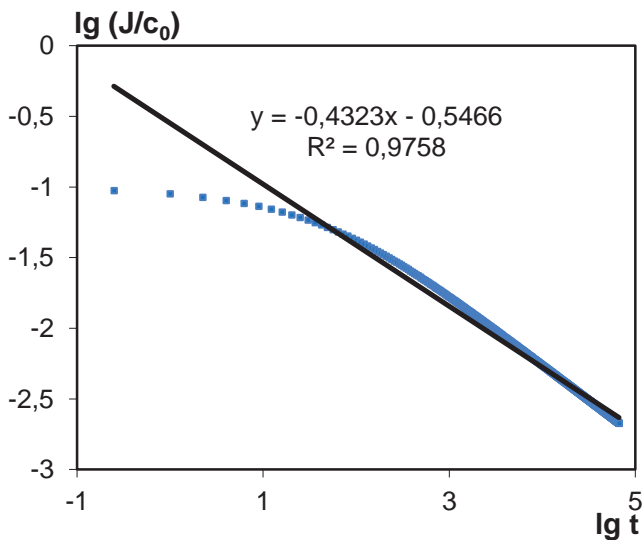
$$E = \int_0^t J \cdot dt = \frac{2 \cdot c_0}{k_D} \sqrt{\frac{t}{\pi}} + \frac{c_0}{h \cdot k_D^2} \left( \operatorname{erfc}(h \cdot k_D \sqrt{t}) \cdot e^{h^2 \cdot k_D^2 \cdot t} - 1 \right) \quad (19)$$

Wobei  $k_D = \frac{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_W}}{\sqrt{D_B \cdot D_W}}$

In den Bildern 9 und 10 sind E und J graphisch im doppeltlogarithmischen Maßstab dargestellt. Die Auswahl der dargestellten Zeitpunkte erfolgte nach  $\sqrt{t}$ -Gesetz. Es ist ersichtlich, dass beim Vorhandensein einer Grenzschicht keine lineare Beziehung zwischen  $\lg(E)$  und  $\lg(t)$  bzw.  $\lg(J)$  und  $\lg(t)$  vorliegt. Zum Vergleich sind Ausgleichsgeraden gegeben.



**Bild 9:** Schematische Darstellung des Verhaltens der Freisetzung mit der Zeit,  $D_B = 1$ ,  $D_W = 1600 \cdot D_B$ ,  $h = 0,1 \cdot D_B$



**Bild 10:** Schematische Darstellung des Verhaltens der Freisetzungsrates mit der Zeit,  $D_B = 1$ ,  $D_W = 1600 \cdot D_B$ ,  $h = 0,1 \cdot D_B$

Wenn keine Grenzschicht vorhanden ist, kann die Durchlässigkeit  $h$  als unendlich angenommen werden. In diesem Fall sind die Konzentrationen an beiden Seiten der Oberfläche gleich (s. Gleichungen (16) und (17)):

$$\text{Bei } x = 0, \quad c_B = c_W = \frac{c_0}{1 + \sqrt{D_W/D_B}} \quad (20)$$

In diesem Fall ergibt sich die kumulative Freisetzung E analog zu Gleichung (12), allerdings steht anstelle von  $\sqrt{D}$ ,  $2/k_D$  bzw.  $2\sqrt{D_B \cdot D_W} / (\sqrt{D_W} + \sqrt{D_B})$ , d. h.

$$E = \frac{2 \cdot c_0}{k_D} \sqrt{\frac{t}{\pi}} = 2 \cdot c_0 \frac{\sqrt{D_B \cdot D_W}}{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_W}} \sqrt{\frac{t}{\pi}} \quad (21)$$

$$J = \frac{\partial E}{\partial t} = \frac{c_0}{k_D \sqrt{\pi \cdot t}} = \frac{c_0}{\sqrt{\pi \cdot t}} \cdot \frac{\sqrt{D_B \cdot D_W}}{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_W}} \quad (22)$$

Es zeigt sich, dass die kumulative Freisetzung E proportional zu  $\sqrt{t}$  und die Freisetzungsrates J proportional zur  $1/\sqrt{t}$  ist, wie es auch beim Ansatz eines einheitlichen Diffusionskoeffizienten der Fall war (vgl. Gleichungen (14) und (15)).

Wenn  $D_B$  wesentlich größer als  $D_W$  ist, so gilt

$$\sqrt{D_B} + \sqrt{D_W} \approx \sqrt{D_W} \quad \text{und} \quad \frac{\sqrt{D_B \cdot D_W}}{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_W}} \approx \frac{\sqrt{D_B \cdot D_W}}{\sqrt{D_W}} = \sqrt{D_B} \quad (23)$$

Daher können die Gleichungen (21) und (22) für die Elution des Baustoffs annähernd wie folgt geschrieben werden:

$$E \approx 2 \cdot c_0 \sqrt{\frac{D_B \cdot t}{\pi}} \quad (24)$$

$$J \approx c_0 \sqrt{\frac{D_B}{\pi \cdot t}} \quad (25)$$

Diese Gleichungen liegen dem DIBt-Konzept zugrunde.

#### 4.4 Sorption und Reaktion

Die mathematische Beschreibung von Sorption und Reaktion ist zu ergänzen, wenn sich diese Prozesse als relevant erweisen. Die Sorption ist stoffspezifisch zu betrachten. Für organische Parameter kann die Sorption bzw. Desorption an Zementsteinphasen ein entscheidender Mechanismus sein. Bei anorganischen Parametern hat die Diffusion häufig größeren Einfluss. Die Sorption von Stoffen an den Behälterwänden im Auslaufversuch wird nicht betrachtet.

Bei chemischen Reaktionen ist zwischen Hydratationsreaktionen und der Änderung der Erscheinungsform eines umweltrelevanten Stoffes zu unterscheiden. Die Verdichtung des Porengefüges durch den Hydratationsfortschritt kann mit einer Reduzierung des Diffusionskoeffizienten beschrieben werden (s. Gleichung (26), /Geh00/). Die Änderung der Erscheinungsform des Parameters muss stoffspezifisch betrachtet werden.

$$\frac{D_t}{D_{t_0}} = \left( \frac{t_0}{t} \right)^d \quad (26)$$

$t_0$ : Hydratationsalter der Referenzprobe

$t$ : Hydratationsalter der untersuchten Probe

$D_t$ : Diffusionskoeffizient von der Probe mit Hydratationsalter  $t$  (Konstante)

$D_{t_0}$ : Diffusionskoeffizient von der Probe mit Hydratationsalter  $t_0$  (Konstante)

$d$ : Konstante

### 5 AUSWERTUNGSVERFAHREN FÜR DEN LANGZEITSTANDTEST

Nach der niederländischen Norm EA NEN 7375:2004 werden die Ergebnisse des Standtests anhand der kumulativen Freisetzung  $E$  ausgewertet (die Bezeichnungen der NEN wurden analog zu den deutschen Bezeichnungen umgestellt):

$$E_i = \frac{c_i \cdot V}{A} \quad (27)$$

$$E_n = \sum_{i=1}^n E_i \quad (28)$$

$E_i$ : Freisetzung im Zeitraum des Elutionsschritts  $i$ , in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$E_n$ : kumulative Freisetzung bis einschließlich Elutionsschritt  $n$ , in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$c_i$ : Konzentration des betrachteten Parameters im Eluat des Elutionsschritts  $i$ , in  $\text{mg}/\text{l}$

$V$ : Volumen des Eluenten, in  $\text{l}$

$A$ : ausgelaugte Oberfläche des Probekörpers, in  $\text{m}^2$

Die Freisetzung wird in doppeltlogarithmischem Maßstab über der Zeit aufgetragen, um den maßgeblichen Freisetzungsmechanismus zu identifizieren. Bei der Berechnung nach Gleichung (28) werden die einzelnen Datenpunkte von den vorhergehenden Elutionsschritten beeinflusst. Daher kann bspw. ein anfänglicher wash-off-Effekt zu Verfälschungen in der Steigung der gesamten Ausgleichsgrade führen. Daher werden rechnerische kumulative Freisetzungen  $E_i^*$  bestimmt, die einer Extrapolation des einzelnen Elutionsschritts  $E_i$  auf den Versuchszeitraum von  $t = 0$  bis  $t_i$  gemäß  $\sqrt{t}$ -Gesetz entsprechen (s. Gleichung (29)).

$$E_i^* = E_i \cdot \frac{\sqrt{t_i}}{\sqrt{t_i} - \sqrt{t_{i-1}}} \quad (29)$$

$E_i^*$ : rechnerische kumulative Freisetzung für Elutionsschritt  $i$  in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$E_i$ : Freisetzung im Zeitraum des Elutionsschritts  $i$ , in  $\text{mg}/\text{m}^2$

$t_i$ : Zeit am Ende des Elutionsschritts  $i$  in  $\text{d}$

$t_{i-1}$ : Zeit am Ende des Elutionsschritts  $(i-1)$  bzw. am Anfang des Elutionsschritts  $i$  in  $\text{d}$

Mit dieser rechnerischen kumulativen Freisetzung wird das Auslaugverhalten eines einzelnen Elutionsschrittes ohne Beeinflussung durch die vorhergehenden Elutionsschritte ausgedrückt. Wenn jedoch die Auslaugung nicht diffusionskontrolliert ist bzw. wenn das Freisetzungsverhalten dem  $\sqrt{t}$ -Gesetz nicht entspricht, ist  $E_i^*$  fehlerhaft. Daher wird die Auswertung für die Modellierung gemäß dem Kapitel „Betonausgangsstoffe und Beton“ des DIBt-Grundsatzpapiers mit der Freisetzungsrates  $J$  durchgeführt.

$$J_i = \frac{E_i}{t_i - t_{i-1}} \quad (30)$$

$J_i$ : mittlere Freisetzungsrates im Elutionsschritt  $i$ , in  $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$

Die Freisetzungsrates entspricht der Geschwindigkeit der Freisetzung.  $J_i$  ist nach Gleichung (30) der Mittelwert der Freisetzungsrates eines Elutionsschritts. Für die Beschreibung des Auslaugverhaltens mittels  $J - t$ - bzw.  $\lg(J) - \lg(t)$ -Diagramm ist es notwendig,  $J_i$  einen entsprechenden Zeitpunkt  $t_{M,i}$  zuzuordnen. Die einfachste Methode ist,  $t_{M,i}$  als Mittelpunkt des Elutionsschritts anzunehmen:

$$t_{M,i} = \frac{t_i + t_{i-1}}{2} \quad (31)$$

Diese Gleichung gilt bei einer linearen Beziehung zwischen  $J$  und  $t$ . Die vorliegenden Daten zeigen jedoch kein solches Verhalten. Bei Diffusion ohne Grenzschicht tritt ein lineares Verhalten zwischen  $\lg(J)$  und  $\lg(t)$  auf (s. Gleichungen (13), (15), (22) und (25)). Der wichtigste Faktor zur Abschätzung der Auslaugkinetik ist die Steigung der Ausgleichsgeraden im  $\lg(J) - \lg(t)$ -Diagramm. Daher wird die Freisetzungsrates  $J$  beschrieben als:

$$\lg J = f \cdot \lg t + \lg m \quad \text{bzw.} \quad J(t) = m \cdot t^f \quad (32)$$

$f, m$ : Konstante

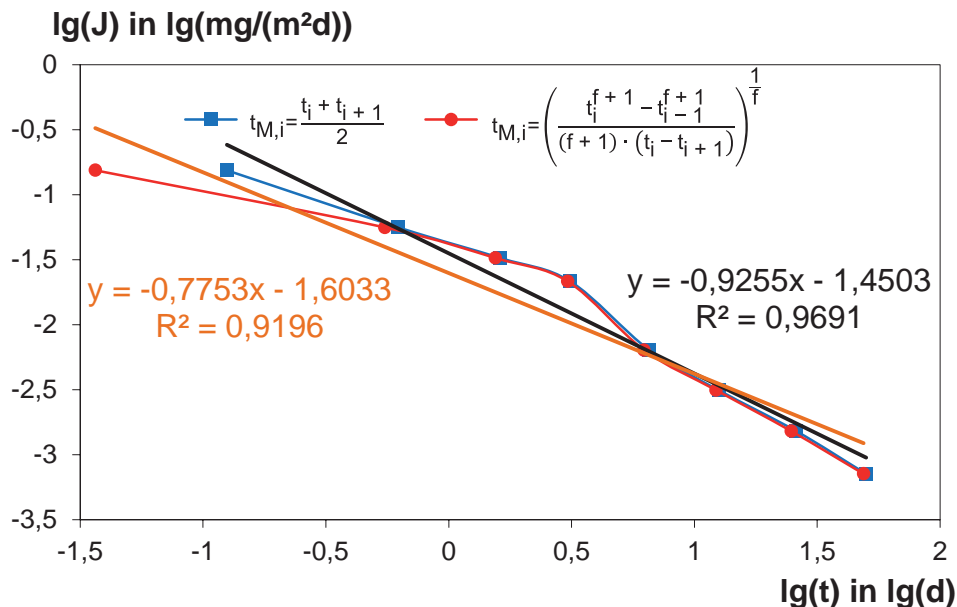
Daher gilt:

$$J_i = J(t_{M,i}) = \frac{E_i}{t_i - t_{i-1}} = \frac{\int_{t_{i-1}}^{t_i} J \cdot dt}{t_i - t_{i-1}} = \frac{\int_{t_{i-1}}^{t_i} m \cdot t^f \cdot dt}{t_i - t_{i-1}} = \frac{m}{f+1} \cdot \frac{t_i^{f+1} - t_{i-1}^{f+1}}{t_i - t_{i-1}} \quad (33)$$

Aus den Gleichungen (32) und (33) folgt:

$$t_{M,i} = \left( \frac{t_i^{f+1} - t_{i-1}^{f+1}}{(f+1) \cdot (t_i - t_{i-1})} \right)^{\frac{1}{f}} \quad (34)$$

Bild 11 zeigt den Unterschied zwischen der Berechnung von  $t_{M,i}$  nach den Gleichungen (31) bzw. (34):



**Bild 11:** Darstellung des Einflusses der Auswahl von  $t_{M,i}$ , Daten aus /Slo01/

Wenn  $J_i$  über der Mitte des Elutionsschrittes aufgetragen wird, liegt der erste Punkt zu weit rechts, daher fällt die Auslaugrate steiler ab als bei der genaueren Auswertung.

Es muss beachtet werden, dass die vorstehende Auswertungsmethode strenggenommen nur für eine lineare Abhängigkeit zwischen  $\lg J$  und  $\lg t$  gilt. Bild 11 zeigt, dass in diesem Beispiel eine Änderung der Steigung zu beobachten ist. Zunächst wird eine Steigung von etwa -0,4 beobachtet. Nach drei Tagen knickt die Gerade ab und die Auslaugrate klingt schneller ab. Ein solcher Knick ist bei 15 % der gesammelten Daten und auch bei Untersuchungen an jungem Beton (Elutionsbeginn im Alter von 1 d) in /Vol12/ aufgetreten. Der Zeitpunkt, bei dem der Steigungswechsel auftritt, variiert. Zudem sind bei den in der Datenbank gesammelten Standtests i. d. R. nur 6 bis 8 Elutionsschritte durchgeführt worden und die Streuung der Spurenanalytik ist groß. Daher kann der Knick in der zeitlichen Entwicklung der Auslaugrate nicht genau bestimmt werden. Aus diesen Gründen wird auf die genauere Auswertung mit zwei Geraden (s. /Vol12/) verzichtet und eine Ausgleichsgerade für den gesamten Versuch bestimmt. Diese Ausgleichsgerade überschätzt die Freisetzung, wenn sie über die Versuchslaufzeit hinaus extrapoliert wird. Allerdings liegt die Annäherung mit dieser Methode deutlich näher an den Versuchsdaten als die bisher postulierte diffusionskontrollierte Auslaugung mit einer Steigung von -0,5.



Zu beachten ist, dass Gleichung (34) nur für Steigungen  $> -1$  verwendet werden kann. Im Versuch können auch steilere Verläufe auftreten.

## 6 AUSWERTUNG DER DATENBANK

### 6.1 Übersicht

Das Auslaugverhalten der umweltrelevanten Parameter wurde jeweils in einer separaten Excel-Datei stoffspezifisch ausgewertet. Die kumulativen Freisetzungen und die Freisetzungsraten wurden nach Gleichung (28) und (30) berechnet. Bei Versuchen, deren Auslaugzeit 64 d betrug, wurden die kumulativen Freisetzungen nach 56 Tagen ( $E_{56d}$ ) linear interpoliert. Die anhand der Versuchsdaten ermittelten kumulativen Freisetzungen wurden mit der zulässigen 56-tägigen kumulativen Freisetzungen (zul.  $E_{56d}$ ) verglichen (s. Tabelle 2). Bei Parallelbestimmungen wurde ein Mittelwert für die Betonmischung berechnet und für die weitere Auswertung herangezogen.

Häufig lagen die Konzentrationen der umweltrelevanten Spurenelemente im Eluat unter der Bestimmungsgrenze. Bei der Auswertung wurden diese Konzentrationen als „worst case“ in Höhe der Bestimmungsgrenze angesetzt. Wenn die Eluatkonzentrationen einer Mischung bei über 40 % der Elutionsschritte unter der Bestimmungsgrenze lagen, wurde der Versuch bei der statistischen Auswertung nicht berücksichtigt. Die Gesamtfreisetzung ist in Tabelle 2, Spalte 8 und 9, mit „<“ bezeichnet. Die zulässigen kumulativen Freisetzungen umweltrelevanter Parameter (zul.  $E_{56d}$ ) wurden analog zum Auswertungskonzept in /DIB11/ anhand der Geringfügigkeitsschwelle (GFS) der jeweiligen Parameter wie folgt berechnet:

$$\text{zul. } E_{56d} = \text{GFS} / 0,97 \quad (35)$$

**Tabelle 2:** Gegenüberstellung der zulässigen Freisetzung zul.  $E_{56d}$  mit den gesammelten experimentellen Daten von Betonen und Mörteln mit unterschiedlichen Zusammensetzungen

Parameter	GFS /LAW04/ $\mu\text{g/l}$	zul. $E_{56d}$ $\text{mg/m}^2$	Anzahl		$E_{56d,MW}$ $\text{mg/m}^2$	$E_{56d,Median}$ $\text{mg/m}^2$	$E_{56d,min.}$ $\text{mg/m}^2$	$E_{56d,max.}$ $\text{mg/m}^2$
			Gesamt	Auswertbar				
-	$\mu\text{g/l}$	$\text{mg/m}^2$	-	-	$\text{mg/m}^2$	$\text{mg/m}^2$	$\text{mg/m}^2$	$\text{mg/m}^2$
1	2	3	4	5	6	7	8	9
Antimon (Sb)	5	5,2	22	8	-	-	0,2	2,0
Arsen (As)	10	10,3	32	11	-	-	< 0,01	7,4
Barium (Ba)	340	351	28	28	42,1	38	2,7	123,3
Blei (Pb)	7	7,2	55	36	0,75	0,44	0,02	6,9
Bor (B)	740	763	0*	0	-	-	-	-
Cadmium (Cd)	0,5	0,52	31	18	-	-	< 0,01	< 0,48
Chrom (Cr)**	7	7,2	65	58	2,6	1,4	0,3	<b>21,8</b>
Cobalt (Co)	8	8,2	31	15	-	-	0,1	1,4
Kupfer (Cu)	14	14,4	50	46	2,38	0,66	0,2	<b>22,2</b>
Molybdän (Mo)	35	36,1	42	16	-	-	0,03	6,4
Nickel (Ni)	14	14,4	31	21	1,44	0,93	< 0,1	12,5
Quecksilber (Hg)	0,2	0,21	17	0	-	-	< 0,01	< 0,12
Selen (Se)	7	7,2	18	4	-	-	< 0,3	2,2
Thallium (Tl)	0,8	0,82	37	19	-	-	< 0,002	<b>0,99</b>
Vanadium (V)	4	4,1	44	39	2,17	1,67	< 0,01	<b>9,8</b>
Zink (Zn)	58	59,8	53	47	3,44	2,06	0,1	20,1
Chlorid (Cl <sup>-</sup> )	250000	257732	26	26	869	541	90	6194
Cyanid (CN <sup>-</sup> )	5	5,2	5	0	-	-	< 1,0	< 2,5
Fluorid (F <sup>-</sup> )	750	773	8	0	-	-	< 48	< 64
Kalium (K <sup>+</sup> )	-	-	51	51	13231	11124	2442	60866
Natrium (Na <sup>+</sup> )	-	-	51	51	2366	1066	323	13844
Sulfat (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )	240000	247423	52	52	2603	822	34	34779
TOC	-	-	12	12	1267	226	79	6880
Triethanolamin	-	-	10	6	10,3	7,75	< 3,5	33,0

\*: In der Datenbank liegen keine Daten von Bor vor

\*\* : laut /LAW04/ gilt die GFS 7  $\mu\text{g/l}$  für Cr III, die zu vergleichenden Freisetzungen sind für Cr<sub>ges</sub>.

$E_{56d,MW}$ : Mittelwert der kumulativen Gesamtfreisetzung aller in der Datenbank enthaltenen zementgebundenen Baustoffe

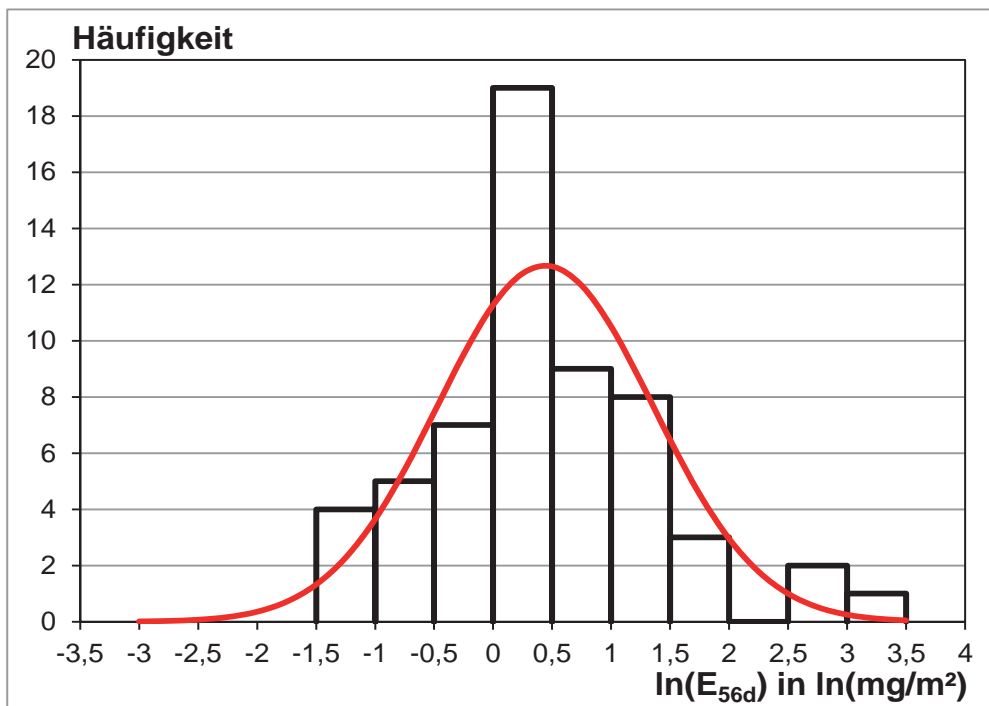
$E_{56d,Median}$ : Medianwert der kumulativen Gesamtfreisetzung aller in der Datenbank enthaltenen zementgebundenen Baustoffe

$E_{56d,min.}$ : Minimalwert der kumulativen Gesamtfreisetzung aller in der Datenbank enthaltenen zementgebundenen Baustoffe

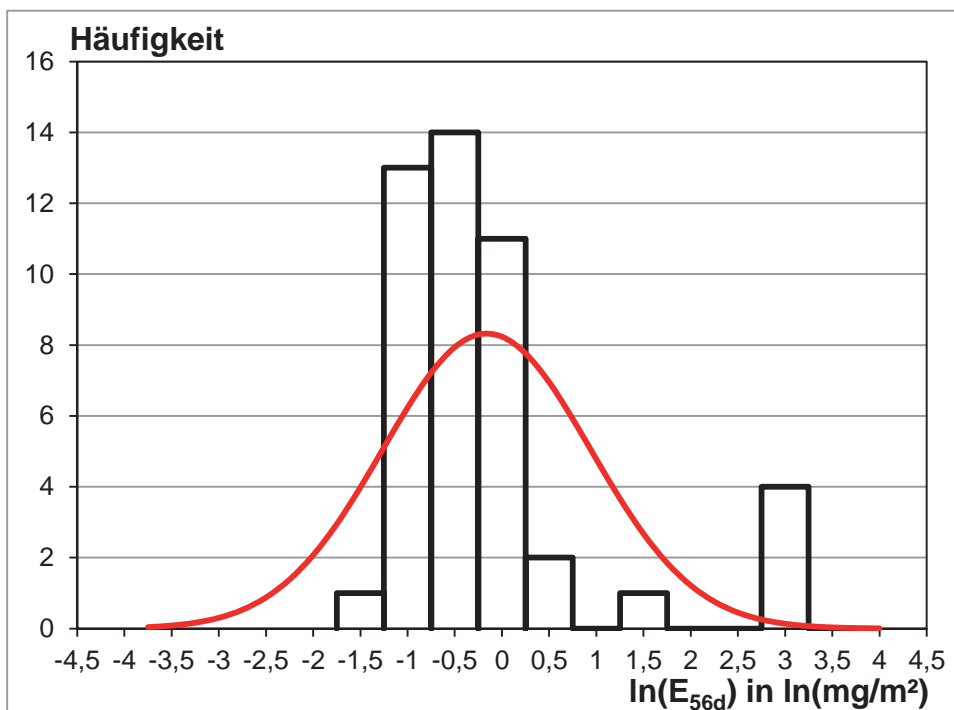
$E_{56d,max.}$ : Maximalwert der kumulativen Gesamtfreisetzung aller in der Datenbank enthaltenen zementgebundenen Baustoffe

Die mittleren kumulativen Freisetzungen der umweltrelevanten Parameter ( $E_{56d,MW}$ ) sind deutlich kleiner als die zulässigen (zul.  $E_{56d}$ ). Die maximalen kumulativen Freisetzungen ( $E_{56d,max.}$ ) der meisten umweltrelevanten Parametern sind ebenfalls kleiner als die zulässigen Freisetzungen. Ausgenommen sind Chrom, Kupfer, Thallium und Vanadium, bei denen zul  $E_{56d}$  von den Maximalwerten überschritten wird. Am 31.10.2012 wurde ein neuer Arbeitsentwurf der sog. Mantelverordnung /BMU12/ fertiggestellt. In Artikel 1 sind für Cadmium und Quecksilber verschärfte Prüfwerte angegeben (Cd: 0,25 µg/l, Hg: 0,05 µg/l). Wenn diese Prüfwerte zugrunde gelegt werden, sind die Bestimmungsgrenzen einiger Datensätze zu hoch. Allein durch die Summierung der Bestimmungsgrenze wird die zulässige Freisetzung zul.  $E_{56d}$  (Cd: 0,258 µg/l, Hg: 0,052 µg/l) überschritten (s. Tabelle 2).

Es ist zu hinterfragen, ob die Ergebnisse der Datenbank trotz der sehr unterschiedlichen Zusammensetzung der zementgebundenen Baustoffe einer statistischen Grundgesamtheit angehören. Dies wurde am Beispiel von Chrom und Kupfer überprüft. Als statistische Verteilung wurde die Log-Normalverteilung angenommen. Daher wurden die 56-tägigen kumulativen Gesamtfreisetzungen logarithmiert und geprüft, ob  $\ln(E_{56d})$ , der Normalverteilung entspricht. Datensätze, bei denen die Eluatkonzentrationen bei über 40 % der Elutionschritte unter der Bestimmungsgrenze lagen, wurden bei dieser Prüfung nicht berücksichtigt. Bei Chrom sind dies 7 Datensätze mit  $E_{56d} = < 1,92$  (höchste Bestimmungsgrenze) und bei Kupfer 4 Datensätze mit teilweise sehr hohen Bestimmungsgrenzen ( $E_{56d} = < 18,6$ ,  $< 10,08$ ,  $< 10,4$  und  $< 0,29$ ). Die statistische Verteilung der  $\ln(E_{56d})$  ist in Bildern 12 und 13 dargestellt. Die Klassen wurde nach DIN 53804-1:2002-04 eingeteilt. Gemäß dem  $\chi^2$ -Test (s. /Joh79/) entspricht die Verteilung von  $\ln(E_{56d})$  bei Chrom der Normalverteilung und bei Kupfer nicht. Dies ist darauf zurückzuführen, dass für Kupfer bei vier Mischungen erhöhte Freisetzungen gefunden wurden. Diese Datensätze stammen aus Zulassungsversuchen. Die erhöhten Kupferkonzentrationen wurden in der entsprechenden Sitzung des zuständigen Sachverständigenausschusses diskutiert, die Ursache für die erhöhten Werte konnte jedoch nicht festgestellt werden. Der Mittelwert aller übrigen Kupferfreisetzungen beträgt 0,75 mg/m<sup>2</sup>, die Spannweite ist 0,20 – 4,06 mg/m<sup>2</sup>.



**Bild 12:** Darstellung der Verteilung von 56-tägigen kumulativen Gesamtfreisetzungen ( $E_{56d}$ ) unterschiedlicher Zusammensetzungen von Chrom



**Bild 13:** Darstellung der Verteilung von 56-tägigen kumulativen Gesamtfreisetzungen ( $E_{56d}$ ) unterschiedlicher Zusammensetzungen von Kupfer

## 6.2 Abgleich der Datenbank mit dem niederländischen Baustoffmonitoring

In /Hof08/ sind statistische Auswertungen von Auslaugversuchen unterschiedlicher Baustoffe aus den Jahren 2003-2006 beschrieben. Die Daten wurden in den Niederlanden im Rahmen des Baustoff-Monitorings generiert. Die monolithischen Baustoffe wurden nach NEN 7345 geprüft. An zementgebundenen Baustoffen sind -Transportbeton, Betonfertigteile, Mörtel, Hüttensandmischung und Faserzementplatten enthalten. Zum Vergleich mit der in diesem Projekt aufgestellten Datenbank wurden die 64-tägigen Freisetzungen der obengenannten Baustoffe werden nach  $\sqrt{t}$ -Gesetz auf  $E_{56d}$  umgerechnet (s. Tabelle 3). Die maximalen und minimalen kumulativen Freisetzungen werden mit der Auswertung der Datenbank verglichen. Die Freisetzungen aus Transportbeton, Betonfertigteilen, Mörteln und Faserzementplatten zeigten keine signifikanten Unterschiede. Daher wurde nur der Medianwert von Betonfertigteilen in Tabelle 3 aufgenommen. Die Freisetzungen von Selen, Vanadium, Zink, Chlorid und Sulfat aus den Hüttensandmischung sind höher als aus anderen zementgebundenen Baustoffen, für eine statische Auswertung ist die Stichprobe der Hüttensandmischung jedoch zu klein (1 bis 6 Datensätze).

Aus Tabelle 3 ist ersichtlich, dass die Medianwerte der niederländischen Betonfertigteile für die Stoffe Sulfat, Vanadium, Arsen, Nickel, Cobalt und Blei um Faktor 2 bis 5 höher liegen als die Medianwerte der in dieser Datenbank gesammelten Standtests. Der niederländischen Auswertung liegen über 80 Einzelproben zu Grunde. Leider können die Ergebnisse nicht in die Datenbank übernommen werden, da in der Quelle keine Einzelergebnisse angegeben sind.

**Tabelle 3:** Gegenüberstellung der Gesamtreisetzung  $E_{56d}$  aus der Datenbank mit /Hof08/, Angabe in  $\text{mg}/\text{m}^2$

Parameter	Daten aus Datenbank			Daten aus /Hof08/ (umgerechnet)			
	Median	$E_{\min.}$	$E_{\max.}$	Median <sup>1)</sup>	$E_{\min.}$ <sup>2)</sup>	$E_{\max.}$ <sup>3)</sup>	$E_{\max.}$ <sup>2)</sup>
1	2	3	4	5	6	7	8
Antimon (Sb)	< 0,56	0,2	2,0	0,27	0,1	2,1	2,1
Arsen (As)	0,43	< 0,01	7,4	1,34	0,4	14,0	14,0
Barium (Ba)	38	2,7	123,3	34	4,7	476	476
Blei (Pb)	0,62	0,02	6,9	3,37	0,91	4,5	4,5
Cadmium (Cd)	-	< 0,01	< 0,48	0,07	0,01	0,47	0,47
Chrom (Cr)	1,53	0,3	21,8	2,06	0,5	25,3	25,3
Cobalt (Co)	0,53	0,1	1,4	1,96	0,5	2,7	2,7
Kupfer (Cu)	0,72	0,2	22,2	1,34	< 0,47	4,7	4,7
Molybdän (Mo)	< 0,48	0,03	6,4	0,67	0,20	4,6	4,6
Nickel (Ni)	0,98	< 0,1	12,5	3,37	0,9	4,5	4,5
Quecksilber (Hg)	-	< 0,01	< 0,12	0,67	0,196	4,58	4,58
Selen (Se)	< 0,56	< 0,3	2,2	0,13	0,0	0,2	0,92
Vanadium (V)	1,58	< 0,01	9,8	4,21	0,9	16,8	90,7
Zink (Zn)	1,89	0,1	20,1	3,37	0,9	18,7	80,4
Chlorid ( $\text{Cl}^-$ )	541	90	6194	195	47	2712	14967
Fluorid ( $\text{F}^-$ )	-	< 48	< 64	35	20	624	624
Sulfat ( $\text{SO}_4^{2-}$ )	822	34	34779	1812	467	37417	38352

1) Auswertung von Betonfertigteilen aus /Hof08/

2) Auswertung aller zementgebundenen Baustoffe aus /Hof08/

3) Auswertung von Transportbeton, Betonfertigteilen, Mörteln und Faserzementplatten (ohne HÜS-Mischung)

### 6.3 Auswertung der Datenbank im Hinblick auf die Auslaugkinetik

Zur Bestimmung der Auslaugkinetik wurde die Steigung nach Gleichungen (34) angepasst. Versuche, bei denen die Eluatkonzentrationen bei über 40 % der Elutionsschritte unter der Bestimmungsgrenze lagen, wurden als nicht auswertbar eingestuft, d. h. bei solchen Versuchen wurde keine Steigung angepasst. Bei den auswertbaren Versuchen wurden die Konzentrationen, die bei der Analyse unter Bestimmungsgrenze lagen, in Höhe der Bestimmungsgrenze angenommen. Für Bor, Quecksilber und Fluorid lagen keine auswertbaren Prüfdaten vor.

**Tabelle 4:** Datenbankauswertung: angepasste Steigungen in den IgJ-Igt Diagrammen

Parameter	Anzahl	Mittelwert	Median	min.	max.	Variationskoeffizient <sup>5)</sup>
-	-	lg(mg/(m <sup>2</sup> d)) / lg(d)				%
1	2	3	4	5	6	7
Antimon (Sb)	8	-0,65	-0,64	-0,80	-0,48	15
Arsen (As)	14	-0,57	-0,59	-0,85	-0,35	24
Barium (Ba)	63 <sup>1)</sup>	-0,59 <sup>1)</sup>	-0,61	-0,79	-0,25 <sup>1)</sup>	21 <sup>1)</sup>
Blei (Pb)	59 <sup>2)</sup>	-0,72 <sup>2)</sup>	-0,72	-1,00	-0,30 <sup>2)</sup>	19 <sup>2)</sup>
Cadmium (Cd)	8	-0,67	-0,65	-0,89	-0,41	21
Chrom (Cr)	108	-0,65	-0,65	-0,86	-0,39	17
Cobalt (Co)	26	-0,65	-0,64	-0,87	-0,50	16
Kupfer (Cu)	84 <sup>3)</sup>	-0,68 <sup>3)</sup>	-0,68	-0,93	-0,40 <sup>3)</sup>	17 <sup>3)</sup>
Molybdän (Mo)	18	-0,74	-0,80	-0,84	-0,56	13
Nickel (Ni)	26	-0,65	-0,72	-0,96	-0,15	32
Selen (Se)	18	-0,61	-0,65	-0,86	-0,36	29
Thallium (Tl)	15 <sup>4)</sup>	-0,66 <sup>4)</sup>	-0,65	-0,69 <sup>4)</sup>	-0,65 <sup>4)</sup>	2 <sup>4)</sup>
Vanadium (V)	67	-0,55	-0,61	-0,85	-0,05	37
Zink (Zn)	90	-0,70	-0,69	-1,01	-0,38	22
Chlorid (Cl <sup>-</sup> )	40	-0,69	-0,63	-1,65	-0,23	41
Cyanid (CN <sup>-</sup> )	3	-0,79	-	-1,15	-0,56	33
Kalium (K <sup>+</sup> )	102	-0,66	-0,64	-1,09	-0,36	17
Natrium (Na <sup>+</sup> )	103	-0,63	-0,61	-0,80	-0,40	15
Sulfat (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )	90	-0,64	-0,68	-1,30	-0,31	27
TOC	18	-0,61	-0,60	-0,78	-0,32	16
Triethanolamin	6	-0,69	-0,68	-0,80	-0,65	7

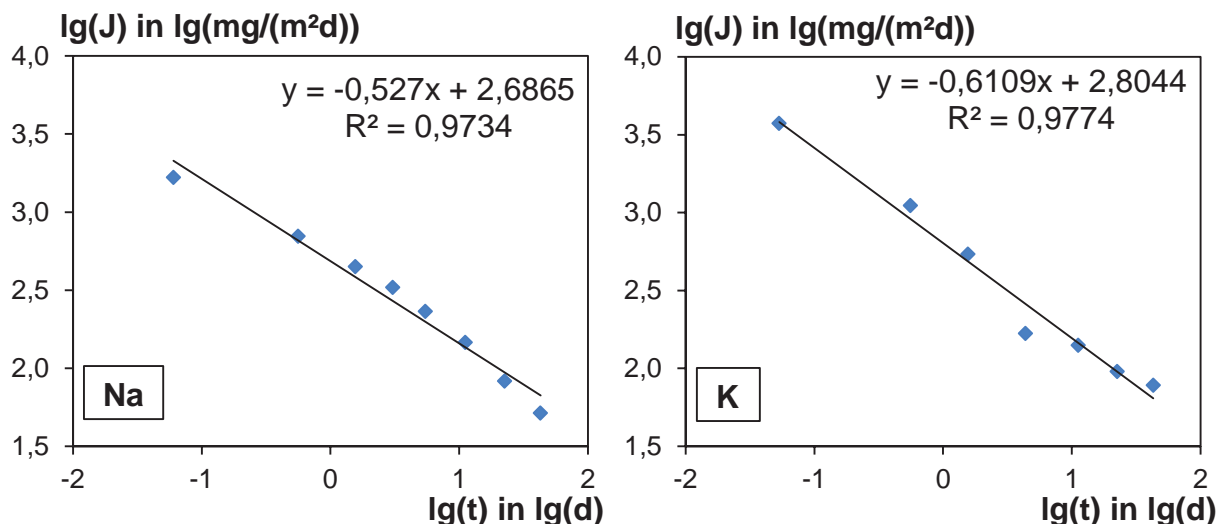
Die Ausreißer wurden gemäß .Außreißertest nach Dixon (für n < 30) bzw. nach Grubbs (n ≥ 30) nach DIN 53804-1:2002-04, aussortiert:

- 1) Ausreißer (-0,14)
- 2) Ausreißer (-0,22)
- 3) Ausreißer (-0,00 und -0,17)
- 4) Ausreißer (-0,47, -0,59, -0,61, -0,82 und -1,01)
- 5) Variationskoeffizient aller enthaltenen zementgebundenen Baustoffe.

Theoretisch liegt die Steigung für eine diffusionskontrollierte Auslaugkinetik bei -0,5. Die in Tabelle 4 dargestellten Mittelwerte der Steigungen umweltrelevanter Parameter sind alle kleiner als -0,5 d. h. die Freisetzungsraten umweltrelevanter Parameter klingen normalerweise schneller ab als bei einer diffusionskontrollierten Kinetik mit konstantem Diffusionskoeffizienten. Die ermittelten Freisetzungsverläufe der Datenbankwerte sind im Anhang B vollständig zusammengestellt.

Die Auslaugung von Natrium und Kalium zeigt bei allen Prüfdaten im IgJ-Igt Diagramm ein nahezu lineares Verhalten (s. Bild 14). Im Mittel ergab sich bei Natrium eine Steigung von -0,63 und bei Kalium von -0,66 (s. Tabelle 4). Aufgrund ihrer geringen Einbindung in

die Hydratationsprodukte des Zements ist bei diesen Stoffen von einer diffusionskontrollierten Auslaugung auszugehen (vgl. /Vol12/). Da beide Stoffe einen steileren Abfall als  $-0,5$  zeigen, ist davon auszugehen, dass sich der Diffusionskoeffizient im Verlauf der Zeit durch Hydratationsprozesse verringert.



**Bild 14:** Beispielhafte Darstellung des Auslaugverhaltens von Natrium und Kalium, Daten aus /Sch95/

Bei den Spurenelementen ist die Auslaugkinetik nicht einheitlich. Dies kann z. T. auf die niedrigen Eluatkonzentrationen und die große Messstreuung zurückgeführt werden. Nur bei Barium, Blei, Chrom, Kupfer, Vanadium und Zink überschreiten die Eluatkonzentrationen i. d. R. die Bestimmungsgrenze. Vermutlich hat Diffusion bei der Auslaugung von Barium und Chrom einen großen Einfluss. Die Steigungen von Blei, Kupfer, Vanadium und Zink streuen sehr stark. In einem Forschungsbericht sind Untersuchungen mit dem DSL-Test des CEN/TC 351 /CEN09/ beschrieben /Ric11/. Die Eluate wurden nach 0,08, 1, 2,25, 8, 14, 15, 28 und 36 Tagen komplett gewechselt, d. h. nach einer 6-tägigen Auslaugung im fünften Elutionsschritt erfolgte ein verkürzter, eintägiger Elutionsschritt. Wenn die Auslaugung diffusionskontrolliert ist, sollte die Konzentration in dem sechsten Elutionsschritt deutlich niedriger sein als im fünften Elutionsschritt (vgl. Gleichung 21). Die Ergebnisse aus /Ric11/ zeigen jedoch, dass die Konzentrationen von Blei, Kupfer und Zink in den sechsten Eluaten ähnlich hoch lagen wie die in den fünften. Bei manchen Versuchen waren sie sogar höher. Das bedeutet, dass die Auslaugung von Blei, Kupfer und Zink wahrscheinlich nicht allein von Diffusion kontrolliert wurde.



Vanadium zeigt ein besonderes Auslaugverhalten. Viele Versuche weisen eine flachere Steigung als -0,5 auf oder zeigen Freisetzungsraten, die zunächst relativ steil abfallen, dann abflachen und z. T. sogar wieder ansteigen (s. Bild 15). Offenbar ist Diffusion bei der Vanadiumauslaugung nicht maßgebend. Vermutlich hat der pH-Wert des Eluats Einfluss auf die Vanadiumauslaugung, allerdings wurde kein eindeutiger Zusammenhang bei der Auswertung der gesammelten Daten gefunden.

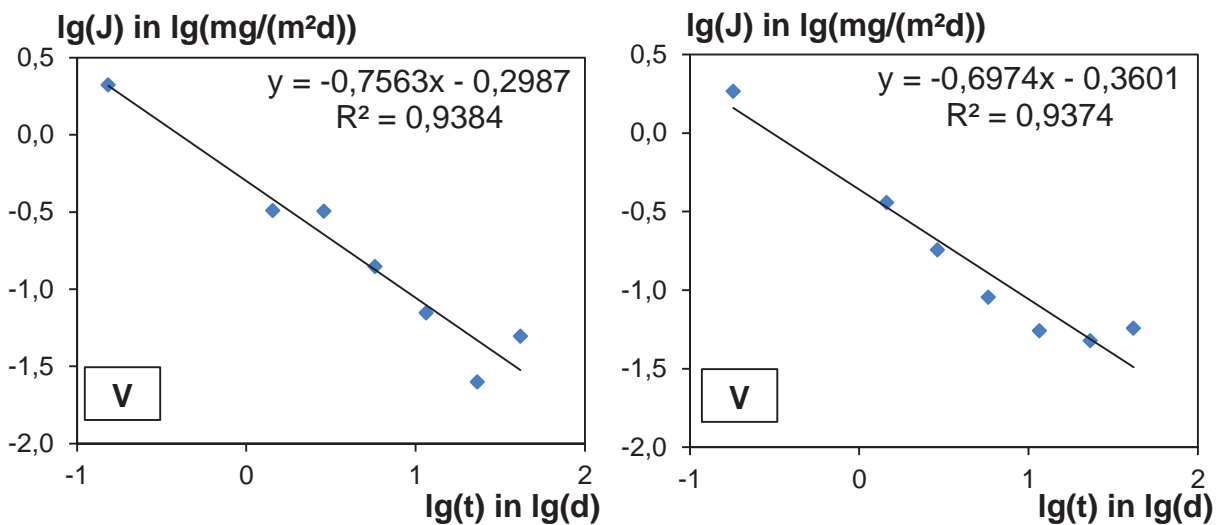


Bild 15: Beispielhafte Darstellung des Auslaugverhaltens von Vanadium, Daten aus /Bra04/

## 7 BESCHREIBUNG DER KONZEPTE ZUR BEWERTUNG DER AUSLAUGUNG IM LANGZEITSTANDTEST

### 7.1 DIBt-Bewertungskonzept

#### 7.1.1 Allgemeines

Nach DIBt-Bewertungskonzept müssen die Konzentrationen umweltrelevanter Stoffe im Grundwasser am Ort der Beurteilung die Geringfügigkeitsschwellen /LAW04/ einhalten. Damit die im Laborversuch ermittelten Freisetzungen mit den Geringfügigkeitsschwellen verglichen werden können, sollen anhand von Modellsimulationen und der im Laborversuch ermittelten Freisetzung bzw. Freisetzungsrate die Konzentrationen im Grundwassers ermittelt werden.

Die Prognose der Stoffkonzentration im Kontaktgrundwasser wird in zwei Schritte unterteilt:

- 1) Extrapolation und Umrechnung der Freisetzungsrates bzw. Ermittlung des Stoffeintrags
- 2) Simulation der Stoffausbreitung mit Hilfe von numerischen Transportmodellen.

Basierend auf den Ergebnissen der Simulation wurde dann eine zulässige Freisetzung für den Laborversuch abgeleitet, so dass Versuchsergebnisse direkt bewertet werden können und nicht in jedem Einzelfall eine Transportmodellierung durchgeführt werden muss.

### 7.1.2 Extrapolation und Umrechnung der Freisetzungsrates

In dem ersten Schritt werden die anhand von Versuchsdaten berechneten Freisetzungsrates (bis 56 d) über längere Zeit extrapoliert (gemäß DIBt-Bewertungskonzept über 6 Monate). Nach dem Bewertungskonzept erfolgt diese Extrapolation nach dem  $\sqrt{t}$ -Gesetz. Zudem werden die bei Laborbedingungen (20 °C, deionisiertes Wasser, elektrische Leitfähigkeit < 0,1  $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) ermittelten Freisetzungsrates in Freisetzungsrates bei realitätsnahen Randbedingungen (10 °C, wassergesättigter Boden) umgerechnet. Das heißt, zwei Einflussfaktoren, Temperatur und Elutionsmedium, werden berücksichtigt:

$$J_S = f_T \cdot f_P \cdot J_V \quad (36)$$

$J_S$ : Freisetzungsrates bzw. Stoffeintrag bei der Simulation

$J_V$ : Auslaugrate aus dem Laborversuch

$f_T$ : Umrechnungsfaktor zur Berücksichtigung der Temperatur (10 °C anstelle von 20 °C)

$f_P$ : Umrechnungsfaktor zur Berücksichtigung des Elutionsmediums (wassergesättigter Boden anstelle von deionisiertem Wasser)

Die Jahresmitteltemperatur des Grundwassers wurde im Bewertungskonzept zu 10 °C angenommen /DIB11/. Der Faktor  $f_T$  kann durch Standtests bei 20 °C und 10 °C experimentell bestimmt werden. Allerdings ist mit Prüfstreuungen zu rechnen. Beispielsweise konnte in /Ric11/ der Unterschied zwischen den Ergebnissen bei Temperaturen zwischen 15 °C und 25 °C wegen der großen Streuung statistisch nicht nachgewiesen werden. Daher ist es besser, mehrere Versuche bei unterschiedlichen Temperaturen durchzuführen und einen funktionalen Zusammenhang zwischen Diffusionskoeffizient und Temperatur aufzustellen. Bei diffusionskontrolliertem Auslaugverfahren kann der Einfluss der Temperatur auf den effektiven Diffusionskoeffizienten mit der Arrhenius-Gleichung beschrieben werden /Hoh02, Pag81/:

$$D_e = A \cdot e^{-\frac{E_D}{R \cdot T}} \quad \text{bzw.} \quad \lg(D_e) = \lg(A) - \frac{E_D}{R \cdot T} \quad (37)$$

$D_e$ : effektiver Diffusionskoeffizient im Feststoff in  $\text{m}^2/\text{s}$

A: pre-exponentieller Faktor in  $\text{m}^2/\text{s}$

$E_D$ : Aktivierungsenergie der Diffusion in  $\text{J}/\text{mol}$

R: allgemeine Gaskonstante,  $R = 8,31 \text{ J}/\text{K} \cdot \text{mol}$

T: Temperatur in K

Im Bewertungskonzept wird von einer diffusionsgesteuerten Freisetzung ausgegangen. Daher können die Faktoren A und  $E_D$  durch einen Serienversuch bei verschiedenen Temperaturen experimentell bestimmt werden. In /Hoh02/ wurde eine Betonmischung bei 5 °C, 20 °C, 30 °C, 40 °C und 60 °C im Langzeitstandtest eluiert. Gemessen wurden die Konzentrationen an Natrium, Chlorid, Chrom und Kupfer. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5 dargestellt.

**Tabelle 5:** Faktoren für die temperaturabhängige Auslaugung einer Betonmischung, /Hoh02/

Faktor	Einheit	Parameter			
		Natrium	Chlorid	Chromat	Kupfer
1	2	3	4	5	6
A	$\text{m}^2/\text{s}$	$6,18 \cdot 10^{-6}$	$2,28 \cdot 10^{-6}$	$1,36 \cdot 10^{-8}$	$1,14 \cdot 10^{-10}$
$E_D$	$\text{kJ}/\text{mol}$	40,4	41,9	27,0	21,6
$D_{B,T=20^\circ\text{C}} / D_{B,T=10^\circ\text{C}}$	-	1,80	1,84	1,48	1,37
$f_T$	-	0,75	0,74	0,82	0,86

Wie Tabelle 5 zeigt, ist der Faktor  $f_T$  stoffspezifisch. Die Transportsimulationen im Bewertungskonzept wurden nur für Chromat durchgeführt (s. Abschnitt 7.1.3). Bei der Auswertung ergab sich der in Gleichung (35) angegebene Faktor von 0,97. Dieser wurde anschließend auf die anderen Parameter übertragen (vgl. Tabelle 2). Dies ist auf Grund der abweichenden  $f_T$  strenggenommen nicht ganz korrekt, der Fehler ist jedoch klein, die in Tabelle 5 angegebenen Faktoren weichen um maximal 10 % von  $f_T$  für Chrom ab.

Der Faktor  $f_T$  wurde in /Hoh02/ allerdings nur für vier Stoffe bestimmt, für andere umweltrelevanten Stoffe besteht noch Forschungsbedarf. Zudem wurde die Versuchsreihe nur an einer Betonmischung durchgeführt (s. /Hoh02/). Ob die ermittelten Faktoren  $f_T$  bei

Betonen mit anderen Zusammensetzungen ebenfalls gelten, ist noch zu überprüfen. Beispielsweise könnten Betone mit CEM III aufgrund von Abweichungen der Ionenzusammensetzung und des Redoxpotentials der Porenlösung abweichende Aktivierungsenergien  $E_D$  oder pre-exponentielle Faktoren  $A$  aufweisen.

Es muss beachtet werden, dass die Arrhenius-Gleichung ausschließlich für diffusionskontrollierte Auslaugung gilt. Bei den Parametern, die nicht diffusionskontrolliert sind, wie z. B. Vanadium, muss durch temperaturabhängige Versuche überprüft werden, inwieweit der Ansatz übertragbar ist.

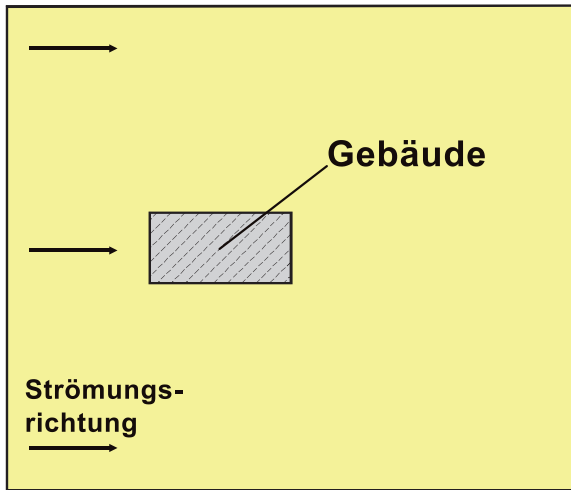
Im Laborversuch wird der Beton im Wasser ausgelaugt. In der Praxis befindet sich das Bauwerk in wassergesättigtem Boden. Es wurde davon ausgegangen, dass die Freisetzung bei diesen Umgebungsbedingungen kleiner ist als im Langzeitstandtest. In /Hoh02/ wurde als Umrechnungsfaktor die effektive Porosität des Bodens gewählt. Dieses Vorgehen wurde in das DIBt-Bewertungskonzept übernommen. Allerdings gibt es bisher keinen experimentellen Beweis für diese Annahme.

### **7.1.3 Simulation der Stoffausbreitung mit Hilfe von numerischen Transportmodellen**

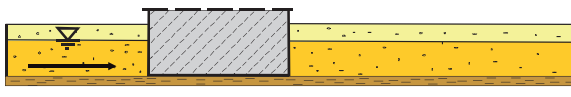
Zur Durchführung von Modellrechnungen war es zunächst erforderlich, ein Modellgebiet zu definieren. Dieses sollte möglichst alle typischen Einbaumöglichkeiten für Festbeton abdecken, dabei jedoch nicht praxisfern sein (realistisches „worst-case“-Szenario). Eine Reihe von Randbedingungen wurde variiert, um sinnvolle Festlegungen treffen zu können. Alle Randbedingungen wurden in den Gremien des DIBt diskutiert und abgestimmt. Die Vorüberlegungen sollten im Rahmen dieses Projektes noch einmal erläutert werden.

Bild 14 zeigt den prinzipiellen Aufbau des Modellgebiets. Es wurde ein Gebäude gewählt, das über die gesamte Mächtigkeit eines ungespannten Grundwasserleiters reicht und in einer bindigen Schicht gründet. Das Gebäude ist als weiße Wanne konzipiert, der Eintrag findet über die Außenwände statt.

### Aufsicht



### Schnitt



**Bild 16:** Schema des gewählten Modellgebiets (Abmessungen siehe Tabelle 6)

Diese Einbausituation wurde gewählt, da sich im Fließschatten des Gebäudes sehr geringe Strömungsgeschwindigkeiten einstellen. Wird ein Gebäude dagegen zusätzlich unterströmt, so ist die Fließgeschwindigkeit höher und es tritt eine Verdünnung auf. Die Bewertung sollte an der Stelle und zu dem Zeitpunkt der höchsten Konzentrationen im Modellgebiet erfolgen. Diese liegt mittig hinter dem Bauwerk an der Oberfläche der Außenwand. Hier befindet sich der Ort der Beurteilung.

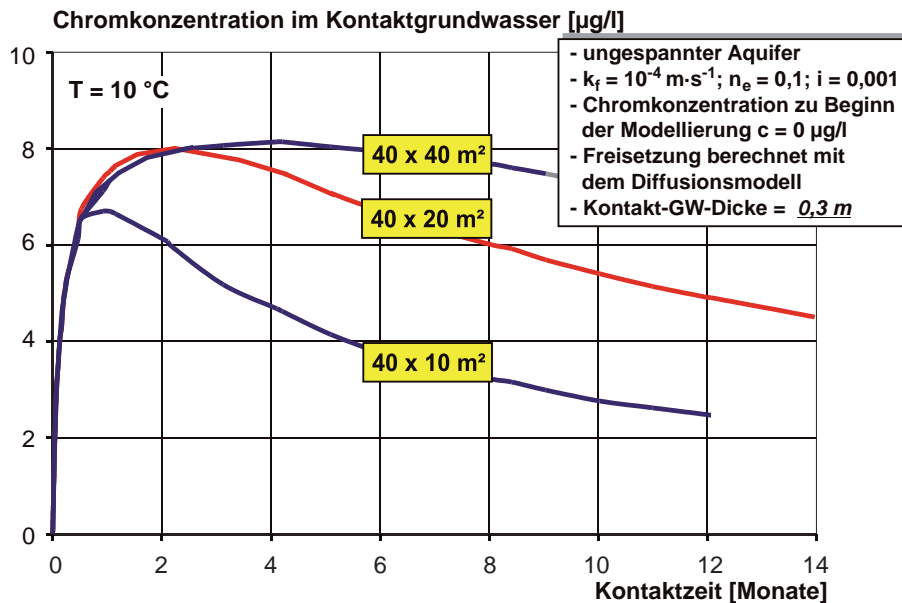
Nach der Festlegung der Einbausituation musste die Größe des Gebäudes, die Beschaffenheit des Bodens sowie Grundwassergefälle und Mächtigkeit definiert werden. Tabelle 6 gibt einen Überblick über die in /Hoh02/ beschriebenen Festlegungen und Variationen.

**Tabelle 6:** Randbedingungen bei der Modellierung von Stoffkonzentrationen im Kontaktgrundwasser in /Hoh02/

Parameter	Symbol	Einheit	Werte
1	2	3	4
Länge des Bauteil in Fließrichtung	-	m	40
Breite des Bauteils	-	m	10, 20, 40
Mächtigkeit des Aquifers	-	m	10
Durchlässigkeitsbeiwert	$k_f$	m/s	$10^{-5}, 10^{-4}, 10^{-3}$
effektive Porosität	$n_e$	-	0,1, 0,2
Grundwassergefälle	$i$	-	$10^{-5}, 10^{-4}, 10^{-3}$
Anisotropiefaktor	-	-	1 (Isotropie)
Zeitspanne	-	Monate	bis 14
Effektiver Diffusionskoeffizient für Chromat im Boden (10 °C)	$D_e$	m <sup>2</sup> /s	$3,34 \times 10^{-11}$
Retardierung, chemischer- oder biologischer Abbau	-	-	mit und ohne
longitudinale Dispersionslänge	$\alpha_L$	m	50
transversale Dispersionslänge	$\alpha_T$	m	$\alpha_L / 10 = 5$

Die Modellierung wurde mit dem FE-Programm Modflow unter Zuhilfenahme eines selbst programmierten Diffusionsprogramms durchgeführt /Hoh02/. Da das FE-Programm relativ lange Rechenzeiten hatte, wurde die Symmetrie des Modellgebiets ausgenutzt und nur die untere Hälfte in der Simulation abgebildet. Es handelt sich um ein zweidimensionales Modell. Die Modellierung erfolgte für Chromat. Am Ort der Beurteilung im Fließschatten des Bauwerks wurden in Fließrichtung hintereinander Beobachtungspunkte gesetzt, an denen die Konzentrationen im Verlauf der Zeit berechnet und erfasst werden. Unmittelbar an der Oberfläche des Betons stellen sich die höchsten Konzentrationen ein. Es wurde entschieden, dass eine kleinräumige Mittelung der Konzentrationen durchgeführt werden kann. Hierfür wurde in Abstimmung mit der LAWA in /Hoh02/ eine Schichtdicke von 0 bis 0,3 m gewählt. Später wurde die Kontaktgrundwasserschichtdicke auf 2 m erhöht, die folgenden Bilder zum Einfluss der Randbedingungen beziehen sich jedoch auf das ursprüngliche Modell aus /Hoh02/.

In Bild 15 wird zunächst auf den Einfluss der Bauwerksgröße eingegangen. Wie in Tabelle 5 gezeigt, wurde die Breite des Bauwerks variiert, da diese größeren Einfluss hat als die Länge.



**Bild 17:** Einfluss der Bauteilgröße auf die Chromatkonzentrationen im Kontaktgrundwasser, Bild 5.15 aus /Hoh02/ (Anmerkung: in /Hoh02/ sind nur die halben Flächeninhalte angegeben, da nur das halbe Modellgebiet simuliert wurde, dies entspricht jedoch den hier genannten Grundflächen)

Bild 17 zeigt, dass die Maximalwerte der Chromatkonzentrationen im Kontaktgrundwasser bei einer Bauteilgröße über  $40 \times 20\text{ m}^2$  nicht mehr signifikant ansteigen. Der Rückgang der Konzentrationen verläuft jedoch langsamer. Es wurde die Bauteilgröße  $40 \times 20\text{ m}^2$  festgelegt, um einen realistischen, ungünstigen Fall abzubilden.

Bei der Wahl des Bodens wurde ein Sandboden vorgegeben, da bindige Böden eine deutlich höhere Adsorptionskapazität aufweisen und dadurch Schadstoffe aufnehmen. Die Grundwasserkonzentrationen sinken entsprechend. Sandböden stellen hier den ungünstigsten Fall dar. Porositäten und Wasserdurchlässigkeitsbeiwerte von Sanden und Kiesen aus unterschiedlichen Quellen sind in den Tabellen 7 bis 9 dargestellt.

**Tabelle 7:** Porosität von natürlich vorkommenden Lockergesteinen /Hoh02, Mut95/

Boden	Gesamtporosität (n)	effektive Porosität ( $n_e$ )
1	2	3
Feinsand	0,42	0,14
Mittelsand	0,40	0,20
Grobsand	0,36	0,25
Feinkies	0,37	0,30
Mittelkies	0,37	0,30
Grobkies	0,37	0,30

**Tabelle 8:** Aus Pumpversuchen errechnete Durchlässigkeitsbeiwerte verschiedener Grundwasserleiter /Hoh02, Mut95/

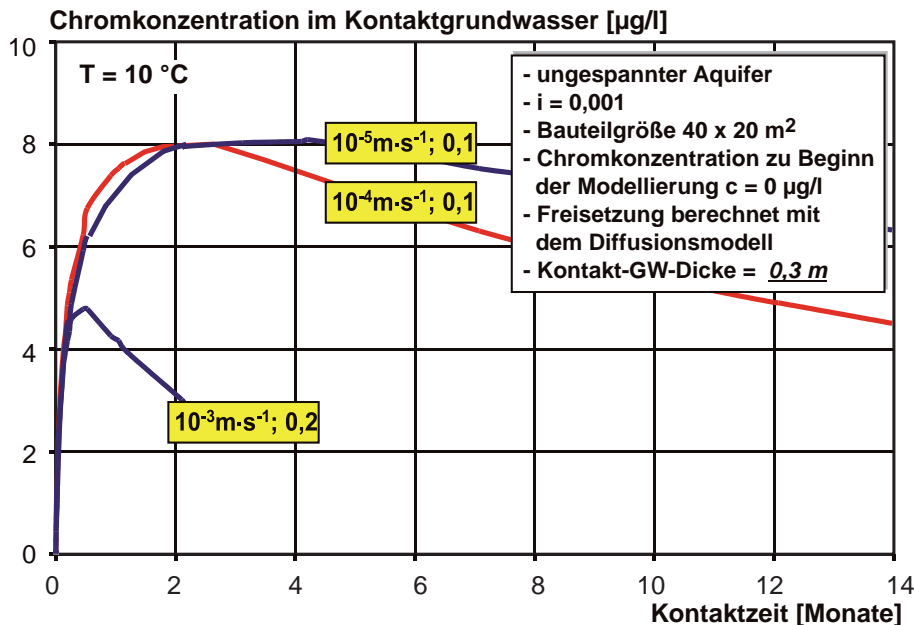
Boden	Durchlässigkeitsbeiwert ( $k_f$ )
-	m/s
1	2
Sand 4 - 8 mm ohne andere Anteile	$3,5 \times 10^{-2}$
Sand 2 - 4 mm ohne andere Anteile	$2,5 \times 10^{-2}$
Grobkies mit Sand, Illertal bei Kempten	$2,0 \times 10^{-2}$
Diluvialkies bei Leipzig	$5,0 \times 10^{-3}$
Flusssand bei Münster	$2,5 \times 10^{-3}$
Dünnensand (Nordsee)	$2,0 \times 10^{-4}$

**Tabelle 9:** Durchlässigkeitsbereiche gemäß DIN 18130-1:1998-05

Durchlässigkeitsbereich	Durchlässigkeitsbeiwert ( $k_f$ )
-	m/s
1	2
sehr schwach durchlässig	$< 10^{-8}$
schwach durchlässig	$10^{-8} - 10^{-6}$
durchlässig	$10^{-6} - 10^{-4}$
stark durchlässig	$10^{-4} - 10^{-2}$
sehr stark durchlässig	$> 10^{-2}$



Die Modellierung wurde in /Hoh02/ mit unterschiedlichen Durchlässigkeitsbeiwerten und effektiven Porositäten durchgeführt. Bild 18 zeigt die betrachteten Variationen.



**Bild 18:** Einfluss von dem Durchlässigkeitsbeiwert und der effektiven Porosität auf die Chromatkonzentrationen im Kontaktgrundwasser /Hoh02/

Die Ergebnisse zeigen, dass die maximalen Chromatkonzentrationen mit abnehmenden Durchlässigkeitsbeiwerten und effektiven Porositäten ansteigen. Der Unterschied der maximalen Chromatkonzentrationen zwischen dem Boden mit Durchlässigkeitsbeiwert  $k_f = 10^{-5}\text{ m/s}$  und dem Boden mit Durchlässigkeitsbeiwert  $10^{-4}\text{ m/s}$  war jedoch nicht sehr groß (s. Bild 18). Daher wurden der Durchlässigkeitsbeiwert  $10^{-4}\text{ m/s}$  und die effektive Porosität  $0,1$  ausgewählt. Dies entspricht einem feinsandigen Boden (s. Tabellen 7 und 8).

Neben der Durchlässigkeit des Bodens beeinflusst das Grundwassergefälle  $i$  die Fließgeschwindigkeit des Grundwassers. Hier wurden ebenfalls verschiedene Variationen getestet (s. Bild 19).

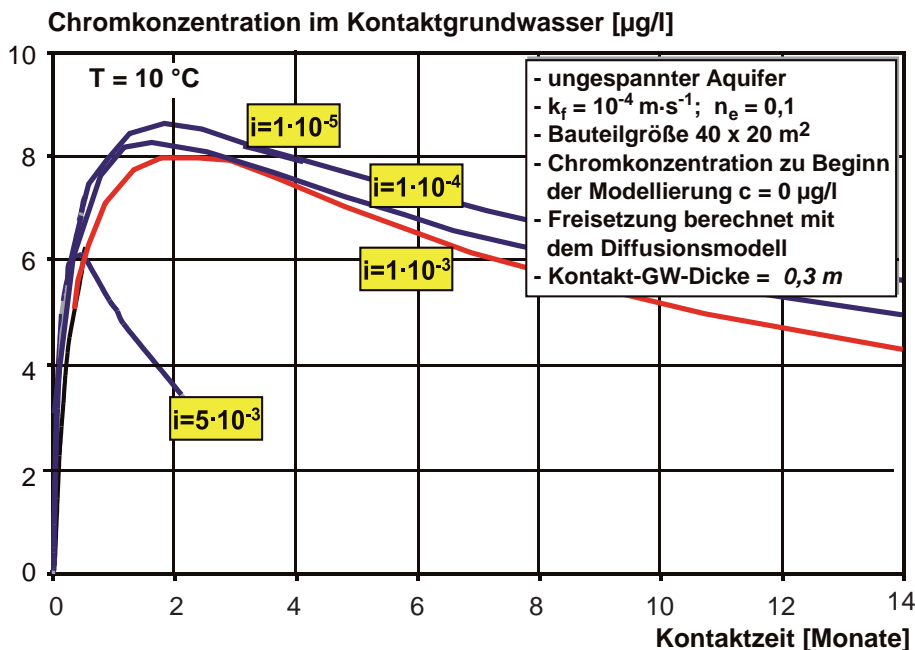


Bild 19: Einfluss des Grundwassergefälles auf die Chromatkonzentrationen im Kontaktgrundwasser /Hoh02/

Die maximalen Chromatkonzentrationen im Kontaktgrundwasser steigen mit abnehmendem Grundwassergefälle an. Bei Grundwassergefällen kleiner  $10^{-3}$  nehmen die Chromatkonzentrationen jedoch nur noch unwesentlich zu. Daher wurde ein Grundwassergefälle in Höhe von  $10^{-3}$  im Modell akzeptiert.

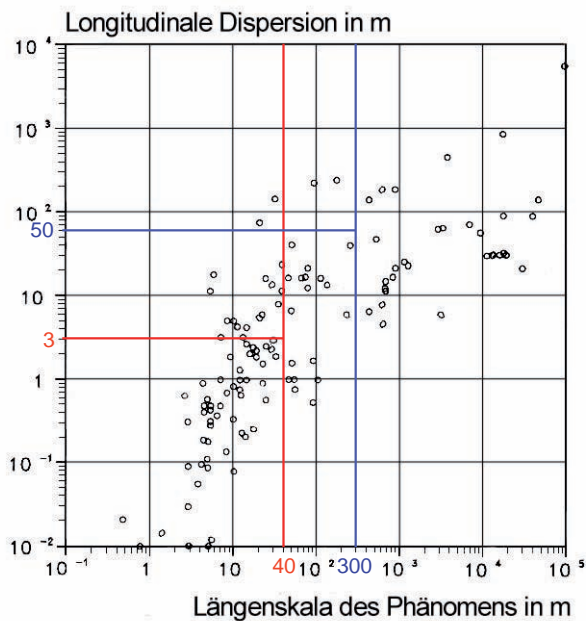
Bei einem Grundwassergefälle von  $i = 10^{-3}$  und einem Durchlässigkeitsbeiwert  $k_f = 10^{-4}\text{ m/s}$  ergibt sich die mittlere Fließgeschwindigkeit des Grundwassers nach Gleichung (38) zu  $10^{-7}\text{ m/s}$ . Dies entspricht der Vorgabe des Grundwasserschutzes /Hoh02, LAW98/

$$v = i \cdot k_f \quad (38)$$

- $v$ : Fließgeschwindigkeit des Grundwassers, in m/s  
 $i$ : Grundwassergefälle, ohne Einheit  
 $n_e$ : Durchlässigkeitsbeiwert des Bodens, in m/s

Hinter dem Bauwerk ist die Fließgeschwindigkeit erheblich geringer. Sie beträgt etwa  $1,2 \cdot 10^{-10}\text{ m/s}$ .

Die longitudinale Dispersionslänge  $\alpha_L$  wurde nach /Kin95/ ermittelt (s. Bild 20). Es wurde von der Länge des Gesamtsimulationsgebiets (300 m) ausgegangen und ein mittlerer Wert gewählt ( $\alpha_L = 50$  m). Die transversale Dispersionslänge  $\alpha_T$  wurde in Höhe von  $0,1 \times \alpha_L$  angesetzt.



**Bild 20:** Skalenabhängigkeit der longitudinalen Dispersionslänge /Bra05a, Hoh02, Kin95/

Die mit den beschriebenen Vorgaben berechneten mittleren Kontaktgrundwasserkonzentrationen in der Schicht 0 bis 0,3 m wurden anschließend über einen Zeitraum von 6 Monaten gemittelt, da kurzzeitige Überschreitungen der Geringfügigkeitsschwellen als nicht relevant angesehen wurden.

Nach der Überarbeitung der Geringfügigkeitsschwellenwerte im Jahr 2004 wurde auch das Bewertungsverfahren überarbeitet (s. /Bra05a/). Zunächst einmal wurde die Modellierung auf ein kommerzielles Transportprogramm umgestellt: FEFLOW 5.1. Das selbstprogrammierte Diffusionsprogramm aus /Hoh02/ konnte entfallen. Die Randbedingungen wurden im Wesentlichen beibehalten, allerdings wurde aus Gründen der Anschaulichkeit das gesamte Modellgebiet abgebildet. Mit diesem deutlich leistungsstärkeren Programm stellte die Rechenzeit kein Problem mehr dar. Eine weitere Änderung betraf die Dispersionslänge. Hier wurde eine Korrektur vorgenommen, da die Größe des Modellgebiets nicht relevant für die Konzentrationen nah am Bauwerk ist. Von Interesse ist vielmehr der Bereich des Bauwerks

und die unmittelbare Umgebung. Es wurde deshalb eine Längenskala von etwas mehr als 40 m angesetzt. Aus Bild 20 ist ersichtlich, dass Werte zwischen 0,6 m und 40 m auftreten. Bei starken Inhomogenitäten können sich noch höhere Werte ergeben. Es sollte von einem relativ gleichförmigen Boden ausgegangen werden, da eine geringe Aufweitung der Schadstoffwolke den ungünstigeren Fall darstellt. Andererseits kann die Dispersionslänge nicht beliebig klein gewählt werden, da sonst bei der Simulation keine stabile Lösung zu ermitteln ist. Es wurde daher in /Bra05a/ ein Wert von 3 m für die longitudinale Dispersion gewählt. Die transversale Dispersion betrug entsprechend 0,3 m.

Die räumliche Mittelwertbildung wurde in den Gremien des DIBt erneut diskutiert. In /Bra05a/ wurde die Kontaktgrundwasserkonzentration für Schichtdicken von 0,3, 0,5, 1 und 2 m berechnet (s. Bild 21). Es wurde entschieden, dass in Anbetracht der Größe des Bauwerks eine Entfernung von 2 m noch als kleinräumig angesehen werden kann. Die zeitliche Mittelung über 6 Monate wurde beibehalten.

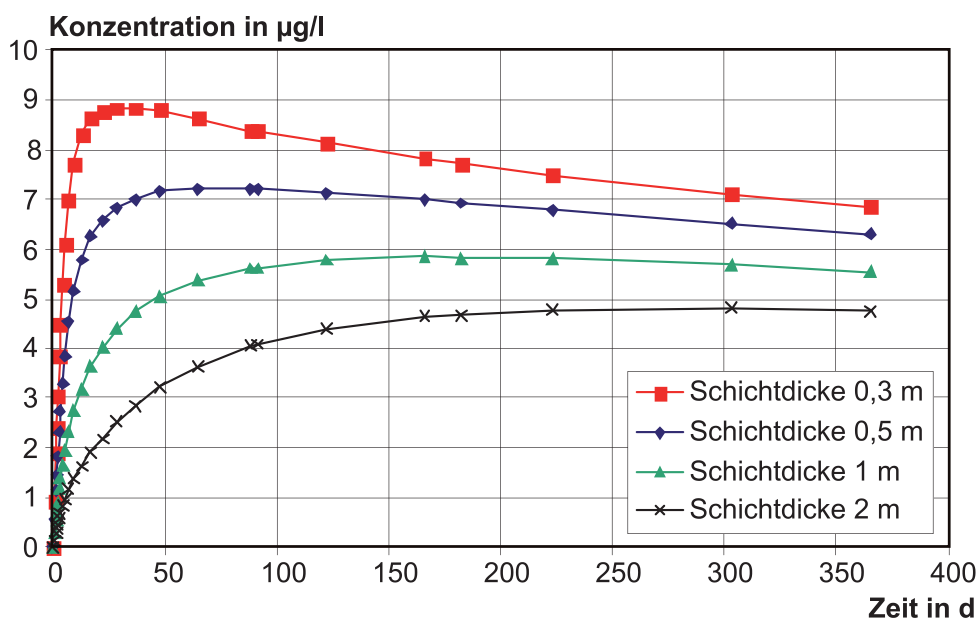


Bild 21: Chromkonzentrationen im Kontaktgrundwasser im Verlauf der Zeit, /Bra05a/

Die Randbedingungen des derzeitigen Bewertungskonzepts /DIB11/ sind in Tabelle 10 noch einmal zusammengefasst.

**Tabelle 10:** Randbedingungen bei der Modellierung von Stoffkonzentrationen im Kontaktgrundwasser nach /DIB11/

Parameter	Symbol	Einheit	/DIB11/
1	2	3	5
Länge des Bauteil in Fließrichtung	-	m	40
Breite des Bauteils	-	m	20
Mächtigkeit des Aquifers	-	m	10
Durchlässigkeitsbeiwert	$k_f$	m/s	$10^{-4}$
effektive Porosität	$n_e$	-	0,1
Grundwassergefälle	$i$	-	$10^{-3}$
Anisotropiefaktor	-	-	1 (Isotropie)
Effektiver Diffusionskoeffizient für Chromat im Boden (10 °C)	$D_e$	m <sup>2</sup> /s	$3,34 \times 10^{-11}$
Retardierung, chemischer- oder biologischer Abbau	-	-	ohne
longitudinale Dispersionslänge	$\alpha_L$	m	3
transversale Dispersionslänge	$\alpha_T$	m	$\alpha_L / 10 = 0,3$
Dicke des Kontaktgrundwassers (räumliche Mittelung)	-	m	2
Bewertungszeitraum (zeitliche Mittelung)	-	Monate	6

#### 7.1.4 Ableitung von zulässigen Freisetzungen im Langzeitstandtest

Die in Abschnitt 7.1.3 beschriebenen Modellrechnungen verfolgten das Ziel, zulässige Freisetzungen für den Langzeitstandtest zu definieren, mit denen sichergestellt werden kann, dass die Geringfügigkeitsschwellen im Kontaktgrundwasser unter Berücksichtigung der kurzzeitigen und kleinräumigen Mittelung nicht überschritten werden. Hierzu ist ein funktionaler Zusammenhang zwischen Prüfergebnis und mittlerer Kontaktgrundwasserkonzentration aufzustellen /Hoh02/. In Bild 20 ist die Korrelation für die derzeit gültige Vorgabe bzgl. der Mittelung dargestellt. Die Ausgleichsgrade entspricht Gleichung (35) in Abschnitt 6.

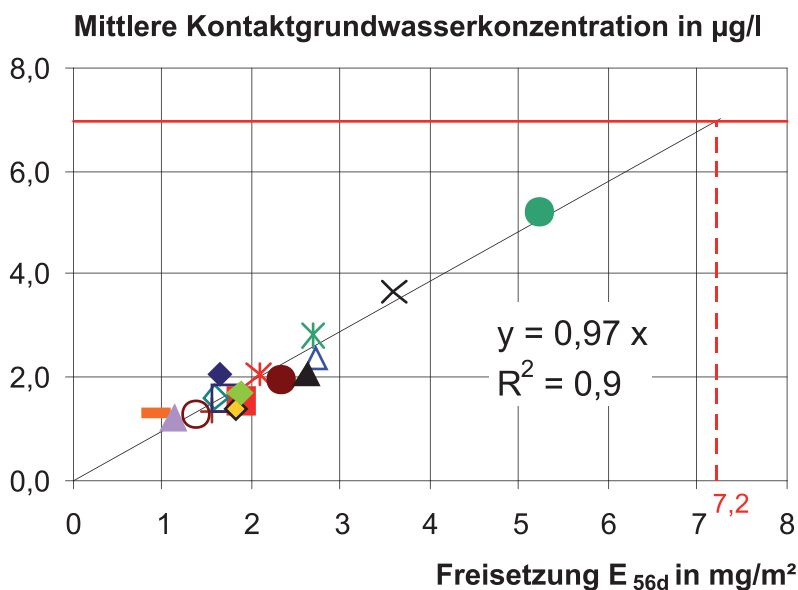
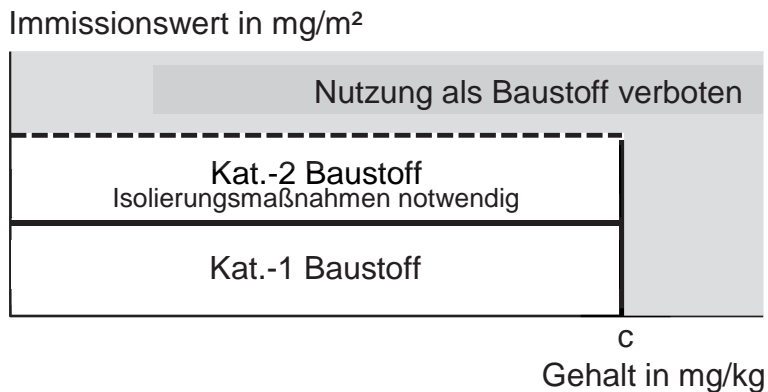


Bild 22: Korrelation zwischen der berechneten Kontaktgrundwasserkonzentration und der Freisetzung im Standtest, /Bra05a/

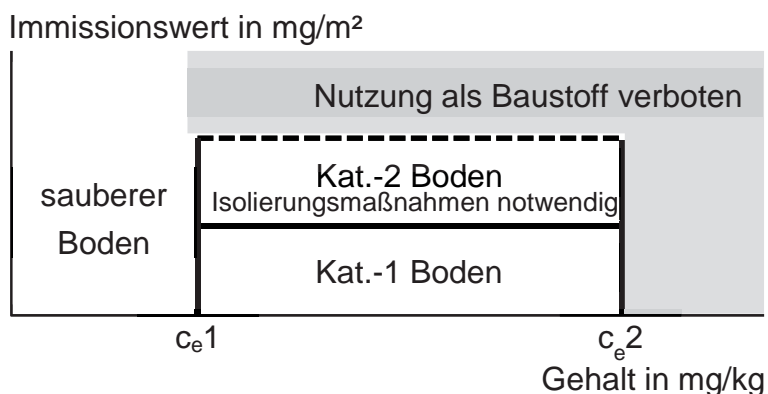
## 7.2 Niederländisches Bewertungskonzept

Das niederländische Standard-Bewertungsverfahren ist im Soil Quality Decree /SQD07/ beschrieben. Dort sind auch Grenzwerte für den niederländischen Langzeitstandtest angegeben, sie werden jedoch nicht begründet. In dem früheren Regelwerk, dem Building Materials Decree (Baustoffbeschluss) /BMD99/, ist das Bewertungskonzept grundlegend beschrieben. Im Gegensatz zum DIBt-Bewertungskonzept Teil II für zementgebundene Baustoffe, das nur für monolithische, zementgebundene Materialien im Grundwasser gilt, befassen sich die niederländischen Regelwerte mit monolithischen sowie durchsickerbaren mineralischen Materialien in oder über dem Grundwasser. Sie beinhalten umfangreiche Regelungen, wie z. B. die Entsorgungspflicht oder Vorschläge zu Isolierungsmaßnahmen. An dieser Stelle wird nur auf das Bewertungskonzept für monolithische Baustoffe eingegangen. Als Bewertungskriterium wird in /BMD99/ keine Konzentration, sondern die Gesamtfreisetzung bzw. Immission herangezogen. Der 100-jährige Immissionswert eines Baustoffes darf 1 % des Gehalts eines definierten Standardbodens mit einer Schichtdicke von 1m nicht überschreiten.

Nach /BMD99/ werden Materialien nach ihrem Stoffgehalt und Immissionswert in zwei Baustoff- bzw. drei Boden-Kategorien unterteilt (s. Bilder 23 und 24).



**Bild 23:** Schematische Darstellung der Einstufung eines Baustoffs nach Baustoffbeschluss /Hen97/



**Bild 24:** Schematische Darstellung der Einstufung eines Bodens nach Baustoffbeschluss /Hen97/

Der Immissionswert  $I$  eines Baumaterials wurde anhand des Emissionswerts  $E$ , der aus dem Auslaugversuch stammt, für einen Zeitraum von 100 Jahren (für Chlorid, Sulfat 1 Jahr) extrapoliert. Die Methode zur Ermittlung des Immissionswert hing von der Art des Baustoffs ab (monolithisch oder nicht monolithisch).

Bei diffusionskontrollierter Auslaugung aus monolithischen Materialien sollte der Immissionswert nach Gleichung (39) kalkuliert werden. Monolithische Materialien, deren Auslaugung nicht diffusionskontrolliert ist, sollten gebrochen und analog zu den nicht monolithischen Materialien im Säulenversuch ausgelaugt und bewertet werden. Hierauf wird an dieser Stelle nicht eingegangen.

$$I_{b,v} = E_{64d} \cdot f_{temp} \cdot f_v \quad (39)$$

$I_{b,v}$ : kalkulierter Immissionswert bei diffusionskontrollierter Auslaugung aus monolithischem Material, in  $mg/m^2$

$E_{64d}$ : nach NEN 7345 bzw. NEN 7375 ermittelte kumulative Freisetzung in einem Zeitraum von 64 Tagen in  $mg/m^2$

$f_{temp}$ : Faktor für die Einflüsse des Temperaturunterschieds zwischen Laborbedingungen (ca. 20 °C) und die Praxis (im Mittel ca. 10 °C),  $f_{temp} = 0,7$

$f_v$ : rechnerischer Faktor, der sich aus verschiedenen Einzelfaktoren wie folgt ergibt:

$$f_v = f_{ext,v} \cdot \sqrt{f_{bev} \cdot f_{iso}} \quad (40)$$

$f_{bev}$ : Befeuchtungsfaktor zur Berücksichtigung von Trockenphasen, bei berechneten Flächen gilt  $f_{bev} = 0,1$ , ansonsten  $f_{bev} = 1$

$f_{iso}$ : Isolationsfaktor, unter Isolierungsmaßnahme wie z. B. bei dichten Deckschichten gilt  $f_{iso} = 0,1$ , ansonsten  $f_{iso} = 1$

$f_{ext,v}$ : Extrapolationsfaktor zur Hochrechnung der Freisetzung für den Bewertungszeitraum

Bei Diffusionsprozessen ist die Emission proportional zu  $\sqrt{t}$ . Für Sulfat, Chlorid und Bromid sollte der Emissionswert nach 1 Jahr extrapoliert werden. Für diese Parameter galt:

$$f_{ext,v} = \sqrt{\frac{365 \text{ d}}{64 \text{ d}}} = 2,4 \quad (41)$$

Für andere anorganische Parameter sollte der Emissionswert über einen Zeitraum von 100 Jahren extrapoliert werden. Analog zur Gleichung (41) ergäbe sich  $f_{ext,v} = 24$ . Da jedoch der Diffusionskoeffizient durch fortschreitende Hydratation mit der Zeit kleiner werden kann, wurde  $f_{ext,v} = 15$  angenommen /Alb93/.

Damit ergab sich für Sulfat, Chlorid und Bromid:

$$f_v = 2,4 \cdot \sqrt{f_{bev} \cdot f_{iso}} \quad (42)$$

Für andere anorganische Parameter galt:

$$f_v = 15 \cdot \sqrt{f_{bev} \cdot f_{iso}} \quad (43)$$



Der Immissionswert kann die mobilisierbare Menge des Parameters nicht überschreiten. Daher gilt:

$$I_{b,v} \leq U_{bes} \cdot \rho \cdot h \quad (44)$$

$U_{bes}$ : gesamte mobilisierbare Menge, nach NEN 7341 bzw. NEN 7371 ermittelt, in mg/kg

$\rho$ : Dichte des Materials in  $\text{kg/m}^3$

$h$ : Schichtdicke des Bauteils in m

Für anorganische Parameter, deren Eluatkonzentrationen sehr niedrig sind (an oder unter der Bestimmungsgrenze) oder deren Auslaugverhalt von anderen Mechanismen (wie z. B. Auswaschung, Auflösung) beeinflusst wird, wurde eine maximale Freisetzung (upper limit)  $E_T$  nach NEN 7345 bzw. NEN 7375 abgeleitet. Bei der Auswertung wurden die Konzentrationen, die bei der Analyse unter Bestimmungsgrenze lagen, in Höhe der Bestimmungsgrenze angenommen:

**Tabelle 11:** Ermittlung der maximalen Freisetzung (upper limit)  $E_T$  nach NEN 7345 bzw. NEN 7375

Phänomen	Gleichung für die maximale Freisetzung (upper limit)
1	2
Eluatkonzentrationen sind niedrig	$E_T = E_{1-8} \cdot \sqrt{T/64}$
Wash-off in ersten zwei Schritten, anschließend niedrige Konzentrationen	$E_T = E_{1-2} + E_{3-8} \cdot \sqrt{(T - t_2)/(64 - t_2)}$
evtl. Erschöpfung	$E_T = E_{1-2} + E_{3-8} \cdot \sqrt{(T - t_2)/(64 - t_2)}$
Auflösung in den Schritten 2-7	$E_T = 2 \cdot E_{1-8} \cdot \sqrt{T/64}$
große Streuungen während der Elution	$E_T = 5 \cdot E_{1-8} \cdot \sqrt{T/64}$

$E_T$ : maximale Freisetzung (upper limit) zur Zeit T in  $\text{mg/m}^2$

$E_{a-b}$ : Freisetzung im Zeitraum vom Beginn des Schritts a bis zum Ende von Schritt b in  $\text{mg/m}^2$

T: Zeit in d, (365 d für Sulfat, Chlorid und Bromid und 36500 d für andere anorganische Parameter)

$t_2$ : Zeit am Ende von Schritt 2, in d

Mit der kalkulierten maximalen Freisetzung (upper limit)  $E_T$  ergab sich der Immissionswert  $I_{b,v}$  nach Gleichung (45) bzw. (46).

Für Sulfat, Chlorid und Bromid galt:

$$I_{b,V} = E_{T=1a} \cdot f_{temp} \cdot \sqrt{f_{bev} \cdot f_{iso}} \quad (45)$$

Für andere anorganische Parameter galt:

$$I_{b,V} = E_{T=100a} \cdot f_{temp} \cdot \frac{15}{24} \sqrt{f_{bev} \cdot f_{iso}} \quad (46)$$

Die ermittelten Immissionswerte wurden gemäß /BMD99/ den zulässigen Immissionswerten gegenübergestellt. Weil die Berechnung von  $I_{b,V}$  relativ kompliziert war, wurde die Beurteilung im Soil Quality Decree /SQD07/ vereinfacht. In der neuen Regelung /SQD07/ werden die zulässigen Freisetzungswerte  $E_{64d}$  nach Langzeitstandtest NEN 7375 in Tabellenform angegeben. Es ist anzunehmen, dass die zulässigen Immissionen entsprechend umgerechnet wurden.

Um einen Vergleich mit den deutschen Grenzwerten zu ermöglichen, wurden die  $E_{64d}$  nach  $\sqrt{t}$ -Gesetz in  $E_{56d}$  umgerechnet (s. Tabelle 12). Es ist ersichtlich, dass das deutsche Konzept für die meisten Parameter deutlich strenger als das niederländische ist, lediglich bei Selen, Chlorid und Sulfat sind die niederländischen Grenzwerte niedriger.

**Tabelle 12:** Gegenüberstellung von zulässigen Freisetzung zul. E<sub>56d</sub> nach deutschem und Bewertungskonzept mit abgeleiteten zul E<sub>56d</sub> nach niederländischen Grenzwerten für Baustoffe der Kategorie-1

Parameter	/DIB11/		Kategorie-1 /SQD07/*	
	GFS	zul. E <sub>56d</sub>	zul. E <sub>64d</sub>	zul. E <sub>56d</sub>
-	µg/l	mg/m <sup>2</sup>	mg/m <sup>2</sup>	mg/m <sup>2</sup>
1	2	3	4	5
Antimon (Sb)	5	<b>5,2</b>	8,7	8,1
Arsen (As)	10	<b>10,3</b>	260	243
Barium (Ba)	340	<b>351</b>	1500	1403
Blei (Pb)	7	<b>7,2</b>	400	374
Bor (B)	740	763	-	-
Cadmium (Cd)	0,5	<b>0,52</b>	3,8	3,6
Chrom (Cr)	7	<b>7,2</b>	120	112
Cobalt (Co)	8	<b>8,2</b>	60	56,1
Kupfer (Cu)	14	<b>14,4</b>	98	91,7
Molybdän (Mo)	35	<b>36,1</b>	144	135
Nickel (Ni)	14	<b>14,4</b>	81	75,8
Quecksilber (Hg)	0,2	<b>0,21</b>	1,4	1,3
Selen (Se)	7	7,2	4,8	<b>4,5</b>
Thallium (Tl)	0,8	0,82	-	-
Vanadium (V)	4	<b>4,1</b>	320	299
Zink (Zn)	58	<b>59,8</b>	800	748
Bromid (Br <sup>-</sup> )	-	-	670	627
Chlorid (Cl <sup>-</sup> )	250000	257732	110000	<b>102896</b>
Cyanid (CN <sup>-</sup> )	5	5,2	-	-
Fluorid (F <sup>-</sup> )	750	<b>773</b>	2500	2339
Sulfat (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )	240000	247423	165000	<b>154343</b>

\*: Baustoffe, deren Immissionswerte diese Grenze überschreiten, werden in Kategorie-2 eingestuft. Das heißt, eine Isolierungsmaßnahme ist für die Anwendung dieser Baustoffe notwendig.

## 8 ÜBERPRÜFUNG DER MODELLRECHNUNGEN NACH DIBT-KONZEPT

### 8.1 Allgemeines

In diesem Projekt sollten anhand der Datenbank zur Auslaugkinetik (Abschnitt 6) neue Vorgaben bezüglich des Schadstoffeintrags abgeleitet werden. Die gesammelten Daten zur Auslaugkinetik zeigen, dass die Freisetzung für die meisten Parameter schneller abklingt als bei reiner Diffusion (s. Tabelle 4). Das DIBt-Bewertungskonzept liegt hier auf der sicheren Seite, es war jedoch zu überprüfen, wie stark sich die mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration beim Ansatz realistischer Funktionen für die Auslaugvorgänge verändert, d. h. welche Sicherheiten hier im Konzept enthalten sind. Es wurde daher die aus den Versuchsdaten bestimmte Ausgleichsfunktion für die Auslaugrate zur Berechnung des Schadstoffeintrags herangezogen (vgl. die Bilder im Anhang B). Analog zur Gleichung (36) wurden der Einfluss des Elutionsmediums und der Temperatur berücksichtigt ( $f_T = 0,82$  für Chrom und  $f_P = 0,1$ ). Bzgl.  $f_P$  ist jedoch Folgendes anzumerken:

Aus den Gleichungen (21) und (22) ergibt sich:

$$E = 2 \cdot c_0 \frac{\sqrt{D_B \cdot D_e}}{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_e}} \sqrt{\frac{t}{\pi}} \quad (47)$$

und

$$J = \frac{c_0}{\sqrt{\pi \cdot t}} \cdot \frac{\sqrt{D_B \cdot D_e}}{\sqrt{D_B} + \sqrt{D_e}} \quad (48)$$

$D_B$ : Diffusionskoeffizient des Betons

$D_e$ : effektiver Diffusionskoeffizient des Bodens, s. Tabelle 10

$D_e$  liegt eine Größenordnung niedriger als der Diffusionskoeffizient in Wasser ( $n_e = 0,1$ ). Der Diffusionskoeffizient des Betons liegt jedoch z. B. bei Chlorid um einen Faktor 30 - 300 niedriger als  $D_e$  (vgl. Abschnitt 4.3.4). Die Abnahme des Diffusionskoeffizienten im Vergleich zum Laborversuch hat daher wenig Einfluss. Nach Gleichung 50 ergibt sich durch die Änderung des Elutionsmediums von Wasser auf wassersättigen Boden ( $n_e=0,1$ ) eine Verringerung der Freisetzung zwischen 4% (bei  $D_e = 300 \cdot D_B$ ) und 11% (bei  $D_e = 30 \cdot D_B$ ). D. h. der Faktor  $f_P$  für Chlorid in Beton sollte im Bereich zwischen 0,89 und 0,96 liegen. Der im Bewertungskonzept angenommene Faktor wurde somit wahrscheinlich viel zu klein abgeschätzt. Dennoch wurde in diesem Projekt  $f_P = 0,1$  gewählt, um die Vergleichbarkeit mit dem bestehenden Konzept herzustellen.

Grundsätzlich ist zu beachten, dass im Langzeitstandtest deionisiertes Wasser verwendet wird. In der Praxis erfolgt die Elution durch Grundwasser. In /Vol12/ sind Auslaugversuche an Zementstein einerseits mit deionisiertem Wasser und andererseits mit Leitungswasser beschrieben. Die Ergebnisse zeigen, dass die Bindemittelmatrix bei Auslaugung mit deionisiertem Wasser aufgrund der niedrigen Ionenkonzentrationen (z. B. Calcium) angegriffen wurde. Die Freisetzung der nachweisbaren Spurenelemente erhöhte sich durch diesen Angriff um einen Faktor 6 bis 16, die Bariumfreisetzung sogar um den Faktor 180. Eine erhöhte Freisetzung durch den verringerten pH-Wert bei Elution mit Leitungswasser war in keinem Fall zu beobachten. Bei einer Überarbeitung des Bewertungskonzepts sollte neben  $f_P$  auch dieser Effekt realistisch abgebildet werden. Dies war nicht Gegenstand dieses Projekts, hier besteht noch Forschungsbedarf.

Die Randbedingungen bei der Modellierung entsprechend Tabelle 10 wurden weitgehend beibehalten. Da jedoch der spezifische Diffusionskoeffizient  $D_0$  von Chrom in Wasser in der Literatur differiert, wurde hier eine Variation vorgenommen. Neben dem bisher verwendeten Wert von  $D_0 = 3,34 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  wurde der Diffusionskoeffizient nach der Stokes-Einstein-Gleichung berechnet:

$$D_0 = \frac{k_B \cdot T}{6 \cdot \pi \cdot \eta \cdot R_0} \quad (49)$$

- $k_B$ : Boltzmann-Konstante,  $1,38 \times 10^{-23} \text{ J}/\text{K}$   
 $T$ : Temperatur, in K  
 $\eta$ : dynamische Viskosität des Wassers, in  $\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$   
 $R_0$ : Hydrodynamischer Radius der diffundierenden Teilchen, in m

Hierbei ist zu berücksichtigen, dass die Viskosität des Wassers von der Temperatur abhängig ist. Die Zusammenhang wird mit der Arrhenius-Gleichung beschrieben:

$$\eta = \eta_0 \cdot e^{-\frac{E_A}{R \cdot T}} \quad (50)$$

- $\eta_0$ : pre-exponentieller Faktor in  $\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$   
 $E_A$ : Aktivierungsenergie in  $\text{J}/\text{mol}$   
 $R$ : allgemeine Gaskonstante,  $R = 8,31 \text{ J}/\text{K}\cdot\text{mol}$

Werte für  $\eta$  sind im Anhang in Tabelle A1 angegeben. Für Chromat ergab sich  $D_0 = 7,73 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ . (Zur Information sind in Tabelle A2 für weitere Parameter Diffusionskoeffizienten aufgelistet.)

Die Variation des Diffusionskoeffizienten schlug sich im Ergebnis der Modellierung nicht nieder, da die Schadstoffausbreitung von Advektion und Dispersion bestimmt wird.

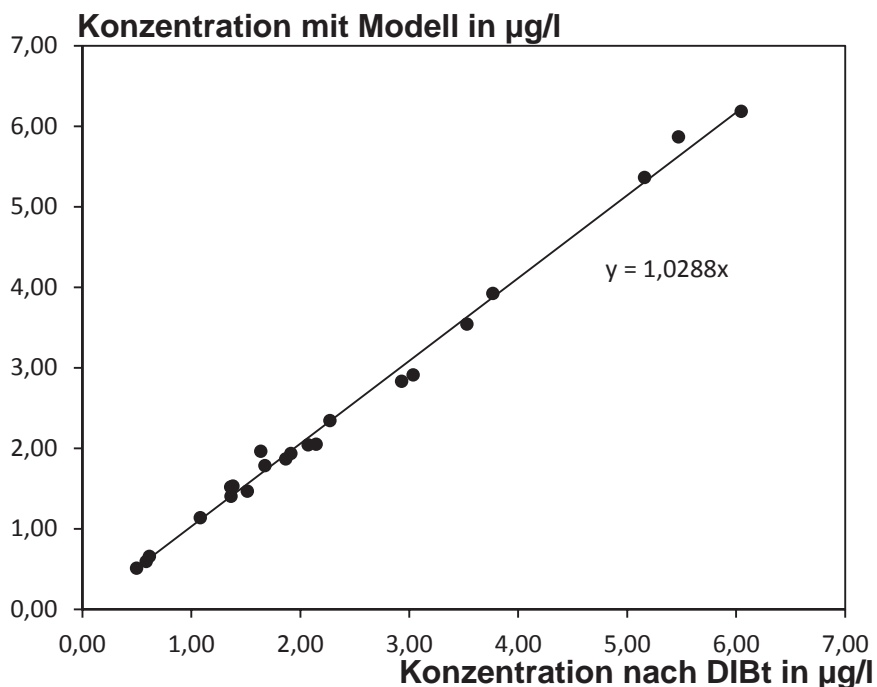
## 8.2 Durchgeführte Transportsimulationen

Für die Transportsimulation wurden 22 Datensätze für Chromat ausgewählt (10 Betone, 10 Mörtel und 2 Zementsteine). Alle Eluatkonzentrationen der ausgewählten Proben lagen oberhalb der Bestimmungsgrenze. Wie in Abschnitt 6 beschrieben wurden die experimentell ermittelten Auslaugraten nach den Gleichungen (32) und (34) mathematisch beschrieben. Die Ausgleichsfunktionen wurden bis 365 Tage extrapoliert und, multipliziert mit  $f_T$  und  $f_P$  (s. Abschnitt 8.1), als Schadstoffeintrag verwendet. Tabelle A3 im Anhang fasst einige Informationen zu den ausgewählten Mischungen, die Versuchsauswertung sowie die Ergebnisse der Transportmodellierung zusammen. Die kumulativen Freisetzungen ( $E_{56d}$ ) wurden, soweit erforderlich, aus Prüfdaten nach  $\sqrt{t}$ -Gesetz extra- oder interpoliert. Die mittlere Kontaktgrundwasserkonzentrationen nach DIBt-Bewertungskonzept ( $c_{2m,6M}$ . nach DIBt) wurde gemäß der in Bild 22 dargestellten Ausgleichsgraden berechnet ( $0,97 \cdot E_{56d}$ ). Die Ergebnisse der neuen Modellierung mit der genaueren Abbildung des Schadstoffeintrags wurden analog zum DIBt-Konzept über eine Schichtdicke von 2 m und einen Zeitraum von 6 Monaten gemittelt ( $c_{2m,6M}$ . nach Überarbeitung). Zusätzlich wurde eine zeitliche Mittelung über ein Jahr durchgeführt ( $c_{2m,1a}$ . nach Überarbeitung). In Tabelle 13 sind die Ergebnisse für Beton und Mörtel zusammengefasst. Es ist ersichtlich, dass kein signifikanter Unterschied zwischen Beton und Mörtel besteht.

Tabelle 13: Vergleich zwischen Beton- und Mörtelproben

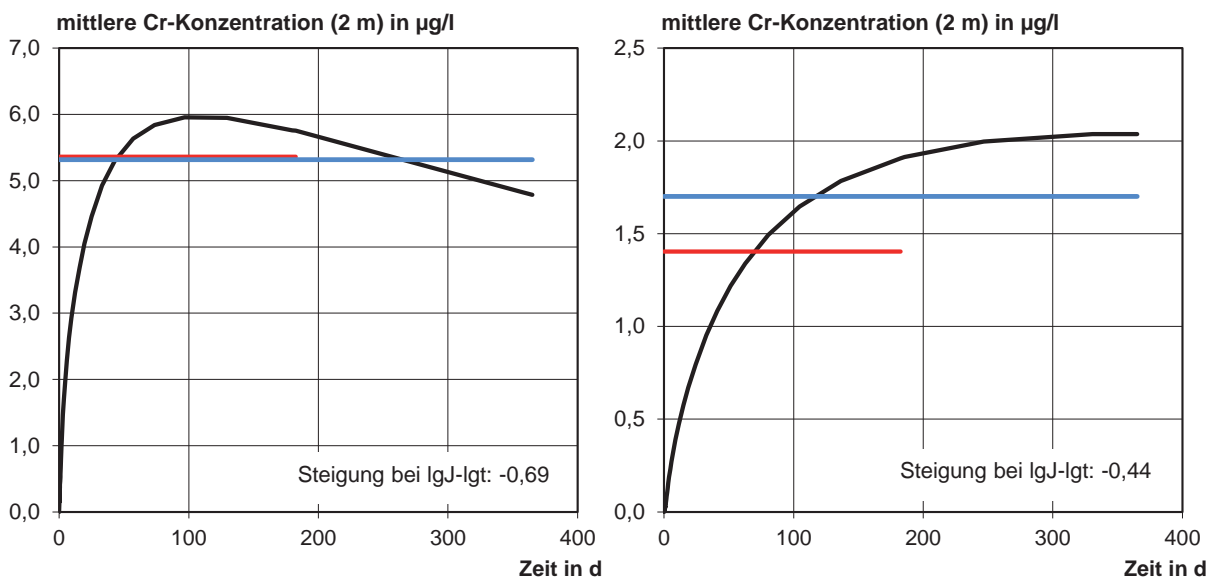
Parameter	Einheit	Mittelwert aller Datensätze	Mittelwert der Betone	Mittelwert der Mörtel
1	2	3	4	5
Steigung	-	-0,64	-0,62	-0,66
$E_{56}$	mg/m <sup>2</sup>	2,43	2,78	2,13
$c_{2m,6M}$ . nach DIBt	µg/l	2,36	2,70	2,06
$c_{2m,6M}$ . nach Überprüfung	µg/l	2,43	2,81	2,09
$c_{2m,1a}$ nach Überprüfung	µg/l	2,45	2,85	2,09

Obwohl die Steigungen der ausgewählte Daten im IgJ-Igt Diagramm meist etwas steiler als -0,5 sind, stimmen die Simulationsergebnisse annähernd mit den Ergebnissen nach /DIBt11/ überein. In Bild 25 ist zur Veranschaulichung ein Vergleich der beiden Konzepte dargestellt. Die Freisetzung nach dem neuen Modell ist marginal größer, da hier die Auslaugung zu Versuchsbeginn ebenfalls abgebildet wird. Bei der ursprünglichen Auswertung wurden die ersten Elutionsschritte bei der Mittlung des Diffusionskoeffizienten weggelassen, wenn die Auslaugraten von der Ausgleichsgraden abwichen (wash-off-Effekte). Nach diesen Ergebnissen ist eine exaktere Beschreibung des Schadstoffeintrags nicht erforderlich.



**Bild 25:** Vergleich zwischen den durch Simulation berechneten Kontaktgrundwasserkonzentrationen und den nach /DIBt11/

Wie in Abschnitt 7.1.3 ausgeführt, sollte die Bewertung an der ungünstigsten Stelle und zum ungünstigsten Zeitpunkt erfolgen. Bei langsam abklingender Freisetzung ist eine zeitliche Mittelung über 6 Monate ggf. nicht der ungünstigste Fall. Zur Verdeutlichung sind in Bild 26 die mittleren Kontaktgrundwasserkonzentrationen für die ersten 6 Monate ( $c_{2m.6M}$ ) und für das erste 1 Jahr ( $c_{2m.1a}$ ) gegenübergestellt. Die Simulationsergebnisse zeigen, dass  $c_{2m.1a}$  bei manchen Proben geringfügig höher war als  $c_{2m.6M}$ . Dies war besonders auffällig bei den Datensätzen, deren Steigungen im IgJ-Igt-Diagramm flacher als -0,5 war. Für den Regelfall (Steigungen im Bereich von -0,65) ist die bisherige Mittelung sinnvoll.



**Bild 26:** Verlauf der mittleren Chromat-Konzentration im Kontaktgrundwasser (Schichtdicke 2 m) bei unterschiedlichen Steigungen mit der Zeit, rote Linie:  $c_{2m.6M.}$ ; blaue Linie:  $c_{2m.1a}$

Auf die Simulation weiterer Parameter wurde verzichtet, da bei vielen Parametern kein systematischer Unterschied zu Chrom festgestellt werden konnte. Wie Tabelle 4 zeigt, lagen die Steigungen im lgJ-Igt-Diagramm häufig um 0,65. Hier wären nur bei einer Berücksichtigung der unterschiedlichen Temperaturfaktoren  $f_T$  Unterschiede zu erwarten. Die Umrechnungsfaktoren fehlen jedoch für die meisten Parameter. Ein schnellerer Rückgang der Auslaugrate tritt bei Blei, Molybdän und Zink auf. Hier enthält das Bewertungskonzept noch Sicherheiten, allerdings ist die Freisetzung dieser Parameter ohnehin unkritisch, so dass eine genauere Betrachtung nicht erforderlich ist.

Vanadium weist ein anderes Auslaugverhalten auf als Chrom. Wie in Abschnitt 6 dargelegt flacht die Auslaugrate bei einigen Versuchen nach einiger Zeit ab und steigt z. T. sogar wieder an, oder es werden durchgehend flachere Steigungen ermittelt. Für diesen Parameter liegt das Bewertungskonzept somit häufig nicht auf der sicheren Seite.. Eine neue Modellierung wäre daher sinnvoll, allerdings ist unklar, wie die Extrapolation der Daten erfolgen soll. Zudem ist zu hinterfragen, ob die ermittelte Freisetzung realistisch ist. Möglicherweise werden durch die speziellen Prüfbedingungen im Langzeitstandtest, insbesondere durch das deionisierte Wasser, Freisetzungen hervorgerufen, die in der Praxis im Grundwasser nicht auftreten. An dieser Stelle besteht Forschungsbedarf. Die Vanadiumfreisetzung müsste im Laborversuche mit verschiedenen Eluenten (deionisiertes Wasser und mineralisierte Wässer) über längere Zeiträume beobachtet werden. Dabei sollten Betone unterschiedlicher Zusammensetzung berücksichtigt werden.



## 9 ZUSAMMENFASSUNG

In diesem Forschungsvorhaben wurden Daten von Langzeitstandtests aus zahlreichen Literaturquellen in einer Datenbank gesammelt und ausgewertet. Zusammenfassend ist festzustellen, dass die Freisetzungen der meisten umweltrelevanten Parameter aus zementgebundenen Baustoffen sehr klein sind. Ausgenommen sind Chrom, Kupfer, Thallium und Vanadium, deren Freisetzung umweltrelevant sein kann.

Die Mittelwerte der Steigungen im IgJ-Igt Diagramm sind in aller Regel kleiner als -0,5, was die theoretische Steigung einer rein diffusionskontrollierten Auslaugung mit konstantem Diffusionskoeffizienten ist. Das heißt, die Freisetzungsraten umweltrelevanter Parameter klingen normalerweise schneller ab. Die Alkalien, die kaum in Hydratationsprodukte eingebunden werden und daher diffusiv freigesetzt werden, zeigen im IgJ-Igt-Diagramm Steigungen um -0,65. Daraus ist die Schlussfolgerung zu ziehen, dass der Diffusionskoeffizient aufgrund der Gefügeverdichtung durch eine weitere Hydratation während der Versuchsdurchführung sinkt. Eine Reihe von umweltrelevanten Stoffen zeigen ebenfalls Steigungen im Bereich von -0,65 und werden somit wie die Alkalien diffusionsgesteuert ausgelaugt. Bei einigen Schwermetalle sind jedoch Abweichungen festzustellen. Vanadium zeigt flachere z. T. sogar zum Ende des Auslaugversuchs ansteigende Freisetzungsraten. Offenbar ist Diffusion hier nicht maßgeblich. Dieser Parameter wird durch das Bewertungskonzept nicht abgedeckt. Es sollten weitere Versuche zur Freisetzung über längere Zeiträume durchgeführt und der Einfluss der Versuchsbedingungen durchgeführt werden. Die Auslaugung von Blei, Molybdän und Zink fällt steiler ab als -0,65. Hier tritt wahrscheinlich eine Verarmung auf. Für diese Parameter liegt das Bewertungskonzept auf der sicheren Seite.

Neben der Erstellung der Datenbank sollte in dieser Literaturrecherche das derzeitige Bewertungskonzept des DIBt grundlegend erläutert und die getroffenen Konventionen begründet werden. Das Konzept basiert auf Modellsimulationen, mit denen die Konzentrationen der umweltrelevanten Stoffe im Kontaktgrundwasser prognostiziert werden. Als Kontaktgrundwasser wird das Grundwasser in unmittelbarem Kontakt mit dem auslaugenden Bauteil bezeichnet. Die mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration muss die Geringfügigkeitsschwellen /LAW04/ einhalten. Im Abschnitt 7.1 wird das Bewertungskonzept im Detail erläutert. Zum Vergleich ist in Abschnitt 7.2 das niederländische Bewertungskonzept beschrieben, das die Gesamtfreisetzung bzw. Immission als Kriterium heranzieht. Es zeigt sich, dass die deutsche Bewertung für die meisten Parameter strenger ist als die niederländische.

Für den Schadstoffeintrag wurde im bestehenden Konzept ein Diffusionsansatz mit zeitlich konstantem Diffusionskoeffizienten gewählt. Im Rahmen dieses Projekts sollte ein realitätsnäherer Ansatz für die Auslaugkinetik gewählt werden. Hierfür wurden die in der Datenbank zusammengestellten Datensätze genutzt. Die Modellierung wurde für Chromat durchgeführt. Die im DIBt-Bewertungskonzept abgeleitete Gleichung zur Berechnung der zulässigen Freisetzung (zul.  $E_{56d} = GFS / 0,97$ ) stellt auch beim Einsatz der realitätsnäheren Auslaugkinetik eine sehr gute Näherung dar. Eine Anpassung des Konzepts ist daher an dieser Stelle nicht erforderlich. Bei der Übertragung der Modellierungsergebnisse auf andere umweltrelevante Stoffe ist zu beachten, dass bei der Ermittlung des Schadstoffeintrags eine Umrechnung der Freisetzung von 20 °C (Labor) auf 10 °C (Praxis) durchgeführt wird. Der entsprechende Faktor ist stoffspezifisch und evtl. materialspezifisch. Die Übertragung auf andere Parameter beinhaltet daher einen Fehler, der wahrscheinlich im Bereich von 10 % liegt. Für eine genauere Bewertung wären zusätzliche Laborversuche erforderlich.

## 10 AUSBLICK

Forschungsbedarf besteht hinsichtlich der Einflüsse der Alterung des Betons, der Sorption und von chemischen Reaktionen. Bei den bisher durchgeführten Standtests sind die Auslaugintervalle näherungsweise nach  $\sqrt{t}$ -Gesetz festgelegt. Daher kann ein löslichkeitskontrolliertes Auslaugverhalten nicht von der diffusionskontrollierten Freisetzung unterschieden werden. Die Eluatkonzentrationen sind bei beiden Mechanismen in allen Elutionsschritten quasi gleich. Dieses Problem könnte durch Auswahl anderer Auslaugintervalle gelöst werden.

Bei einer Änderung des maßgeblichen Auslaugungsmechanismus während des Standtests tritt eine entsprechende Änderung der Steigung im  $\lg(J) - \lg(t)$ - bzw.  $\lg(E) - \lg(t)$ -Diagramm auf. Um diese Änderung zu quantifizieren und das Auslaugverhalten genau zu beschreiben, sind die üblichen 6 bis 8 Elutionsschritte zu wenig. Bei Forschungsprojekten sollte der Versuchszeitraum daher verlängert werden.

Das reale Medium bei der Elution eines Bauteils ist nicht Wasser, sondern wassergesättigter Boden. Der Umrechnungsfaktor zwischen der Freisetzung in Wasser und wassergesättigtem Boden im DIBt-Bewertungskonzept wurde nicht experimentell bestimmt. Er ist sehr wahrscheinlich zu niedrig abgeschätzt, wie eine theoretische Überprüfung anhand einer erweiterten Diffusionsgleichung gezeigt hat. Der Faktor sollte experimentell überprüft und ggf. korrigiert werden.

Weiterhin ist die Beschaffenheit des Wassers (pH-Wert, gelöste Ionen etc.), ein entscheidender Faktor für das Auslaugverhalten umweltrelevanter Parameter. Im Langzeitstandtest wird Reinstwasser benutzt, in der Praxis erfolgt die Auslaugung durch Grundwasser. Der Laborversuch ist insbesondere deshalb problematisch, weil das deionisierte Wasser einen lösenden Angriff auf den Beton ausübt. Dadurch wird die Freisetzung der umweltrelevanten Stoffe stark erhöht /Vol12/. Dies sollte bei einer zukünftigen Überarbeitung des Bewertungskonzepts berücksichtigt werden. Zu diesem Zweck sollten Vergleichsversuche durchgeführt werden, um eine experimentelle Grundlage für die Ableitung eines Minderungsfaktors zu schaffen.

## 11 LITERATUR

- /Alb93/ Aalbers T.G. ; Wilde P.G.M. de ; Rood G.A. ; Vermij P.H.M. ; Saft R.J. ; Beek A.I.M. van de ; Broekman M.H. ; Masereeuw P. ; Kamphuis C. ; Dekker P.M. ; Valentijn E.A.: Milieuhygienische Kwaliteit van Primaire en Secundaire Bouwmaterialen in Relatie tot Hergebruik en Bodem- en Oppervlaktewaterenbescherming. RIVM-Rapport No. 771402006 en RIZA-Rapport No. 93.042 (Environmental Quality of Primary and Secondary Building Materials in Relation to Recycling and Soil and Surface Water Protection; RIVM Report No. 771402006 and RIZA Report No. 93.042). Dez. 1993
- /BBo99/ BBodSchV: Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung. Stand: 12.Juli.1999
- /Bra04/ Brameshuber, W. ; Vollpracht, A.: Konzept zur Bewertung des Auslaugverhaltens mineralischer Baustoffe/körper durch Sicker- und Kontaktgrundwasserprognose - Teil 2: Bestimmung der Quellstärke für Boden und Grundwasser in Kontakt mit Betonfundamenten und Bodeninjektionen. Aachen : Institut für Bauforschung, 2004. - Forschungsbericht Nr. F 645
- /Bra05a/ Brameshuber, W. ; Vollpracht, A.: Modellrechnungen zur Untersuchung der Auswirkungen der neuen LAWA-Regelungen auf die Bewertung der Umweltverträglichkeit von Beton. Aachen : Institut für Bauforschung, 2005. – Forschungsbericht Nr. F 909
- /Bra05b/ Brameshuber, W. ; Vollpracht, A.: Erweiterung der Datenbasis zur Umweltverträglichkeit von Beton unter Berücksichtigung der neuen Regelwerke. Aachen : Institut für Bauforschung, 2005. - Forschungsbericht Nr. F 7014
- /BMD99/ Soil Directorate ; Ministry of Housing ; Spatial Planning and the Environment: Building Materials (Soil and Surface Waters Protection) Decree. 1999

- /Cra79/ Crank, J.: The Mathematics of Diffusion. 2nd. Ed, London : Oxford University Press, 1979
- /DAf05/ Deutscher Ausschuss für Stahlbeton, TA Umwelt: DAfStb-Richtlinie „Bestimmung der Freisetzung anorganischer Stoffe durch Auslaugung aus zementgebundenen Baustoffen“. – Ausgabe Mai 2005
- /DIB05/ Tagungsdokumente Top 3, Top 4 und Top 6 von der 50. DIBt-Sitzung des SVA „Betontechnologie“ B3“Betonzusatzstoffe“ am 26.08.2005
- /DIB11/ Deutsches Institut für Bautechnik (DIBt): Grundsätze zur Bewertung der Auswirkungen von Bauprodukten auf Boden und Grundwasser – Teil I bis III. Berlin : Deutsches Institut für Bautechnik, 2011
- /Ehr05/ Ehrnsperger, R. ; Misch, W.: Gesundheits- und Umweltkriterien bei der Umsetzung der EGBauprodukten-Richtlinie (BPR), Deutsches Institut für Bautechnik (DIBt), Berlin, Mai 2005
- /Geh00/ Gehlen, C.: Probabilistische Lebensdauerermessung von Stahlbetonbauwerken : Zuverlässigkeitsbetrachtungen zur wirksamen Vermeidung von Bewehrungskorrosion. Berlin : Beuth. - In: Schriftenreihe des Deutschen Ausschusses für Stahlbeton (2000), Nr. 510 = Dissertation
- /Gri06/ Grimm, H.: Eigenschaften von Wasser in Tabellen, Version 27.04.2006, [http://www.wissenschaft-technik-ethik.de/wasser\\_eigenschaften.html](http://www.wissenschaft-technik-ethik.de/wasser_eigenschaften.html)
- /Hen97/ Hendriks, Ch. F. ; Raad, J. S.: Report: Principles and background of the Building Materials Decree in The Netherlands. RILEM TC SRM: sustainable application of mineral raw materials in construction. - In: Materials and Structures/Matériaux et Constructions, Vol. 30, January-February 1997, S. 3-10
- /Hof08/ Hofstra, U.: Monitoring Environmental Quality of Stony Construction Materials 2003-2006, final report. INTRON: A839530/R20075912/JWy/Jwy, RIVM: 711701066/2007, 14. April 2008
- /Hoh02/ Hohberg, I.: Charakterisierung, Modellierung und Bewertung des Auslaugverhaltens umweltrelevanter, anorganischer Stoffe aus zementgebundenen Baustoffen. Berlin : Beuth. - In: Schriftenreihe des Deutschen Ausschusses für Stahlbeton (2003), Nr. 542, Dissertation
- /Joh79/ John, B.: Statistische Verfahren für Technische Meßreihen - Arbeitsbuch für den Ingenieur. Hanser Fachbuchverlag, 1979, ISBN: 978-3446123816
- /Kin95/ Kinzelbach, W. ; Rausch, R.: Grundwassermodellierung. Eine Einführung mit Übungen. Stuttgart : Borntraeger, 1995
- /LAW98/ Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA) ; ad-hoc Arbeitskreis „Prüfwerte“: Prüfwerte (Geringfügigkeitsschwellen) zur Bewertung von Grundwasserschäden und ihre Begründung. Stand 08. April 1998

- /LAW02/ Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA): Grundsätze des vorsorgenden Grundwasserschutzes bei Abfallverwertung und Produkteinsatz (GAP-Papier). Geschäftsstelle der LAWA, Niedersächsisches Umweltministerium, 2002
- /LAW04/ Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA): Unterausschuss „Geringfügigkeitsschwellen“: Ableitung von Geringfügigkeitsschwellen für das Grundwasser. Stand: Dez. 2004. Adresse: [www.lawa.de](http://www.lawa.de)
- /Lid95/ Lide, D.R. ; Frederikse, H.P.R.: CRC Handbook of Chemistry and Physics. 76. Ed. New York: CRC Press, 1995, ISBN 0-8493-0476-8
- /Ifu01/ Bayerisches Landesamt für Wasserwirtschaft: Grundwassertemperatur – Tiefenprofilmessungen der bayerischen Wasserwirtschaftsverwaltung. In: Materialienbände des Bayerischen Landesamtes für Wasserwirtschaft Nr. 103, 2001
- /BMU12/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Referat WA III 3 (Recht des Bodenschutzes): Verordnung zur Festlegung von Anforderungen für das Einbringen und das Einleiten von Stoffen in das Grundwasser, an den Einbau von Ersatzbaustoffen und für die Verwendung von Boden und bodenähnlichem Material, Arbeitsentwurf, Stand: 31.10.2012
- /Mar05/ Marion, A.-M. ; Laneve De, M. ; Grauw De, A.: Study of the Leaching Behaviour of Paving Concretes: Quantification of Heavy Metal Content in Leachates Issued from Tank Test Using Demineralized Water. In: Cement and Concrete Research 35 (2005), Nr. 5, S. 951-957
- /Mut95/ Mutschmann, J. ; Stimmelmayer, F.: Taschenbuch der Wasserversorgung. 11. Aufl. Stuttgart: Franck-Kosmos, 1995, ISBN: 3528025549
- /NEN04/ Environment Agency: EA NEN 7375:2004: Leaching Characteristics of Moulded or Monolithic Building and Waste Materials; Determination of Leaching of Inorganic Components with the Diffusion Test: 'The Tank Test'. Based on a translation of the Netherlands Normalisation Institute Standard, Version 1.0, April 2005
- /CEN09/ CEN/TC 351/WG1 TS-2: Generic horizontal dynamic surface leaching test (DSL) for determination of surface dependent release of substances from monolithic or plate-like or sheet-like construction products. CEN/TC 351/WG1 AHG "Working-plan N 0086 TS-2, 2009-01-19
- /Pag81/ Page, C.L. ; Short, N.R. ; El Tarras, A.: Diffusion of Chloride Ions in Hardened Cement Pastes. In: Cement and Concrete Research 11 (1981), Nr. 3, S. 395-406
- /Ran06a/ Rankers, R. ; Vannahme, S.: Zulassungsversuche an Flugaschen bei Mitverbrennung von Petrolkoks aus dem Kraftwerk Scholven Block B. Aachen : Institut für Bauforschung, 2004. - Prüfbericht Nr. M715-2
- /Ran06b/ Rankers, R. ; Vannahme, S.: Zulassungsversuche an Kesselsand „Scholven Block B“ bei Mitverbrennung von Petrolkoks aus dem Kraftwerk Scholven. Aachen : Institut für Bauforschung, 2004. - Prüfbericht Nr. M715-3

- /Ran07/ Rankers, R. ; Vannahme, S.: Zulassungsversuche an Kesselsand „Scholven Block F“ bei Mitverbrennung von Petrolkoks aus dem Kraftwerk Scholven. Aachen : Institut für Bauforschung, 2004. - Prüfbericht Nr. M715-4
- /Ric11/ Rickert, J. ; Spanka, G. ; Nebel, H.: Harmonisierung von Prüfmethode für den Vollzug der EG-Bauprodukten-Richtlinie: Validierung eines europäischen Auslaugtests für Bauprodukte. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, August 2011
- /Sch95/ Schießl, P. ; Hohberg, I.: Umweltverträglichkeit von zementgebundenen Baustoffen - Untersuchungen zum Auslaugverhalten. Aachen : Institut für Bauforschung, 1995. - Forschungsbericht Nr. F 414
- /Slo87/ Sloot van der, H.A. ; Groot de, G.J. ; Wijkstra, J.: Leaching characteristics of construction materials and stabilization Products containing waste materials. Petten : Netherlands Energy Research Foundation (ECN), 1987. - Restricted Distribution ECN-87-093
- /Slo01/ Sloot van der, H.A. ; Hoede, D. ; Rietra, R.P.J.J. ; ECN ; ET AL: Environmental Criteria for Cement Based Products : ECRICEM. Phase I: Ordinary Portland Cements. Petten : Energy Research Centre of the Netherlands, 2001. – Forschungsbericht Nr. ECN-C--01-069
- /SQD07/ Der Staatssekretär für Wohnungswesen, Raumordnung und Umwelt, der Minister für Landwirtschaft, Natur und Lebensmittelqualität sowie die Staatssekretärin für Verkehr und Wasserwirtschaft: Soil Quality Decree (Netherlands), 2007
- /Vol12/ Vollpracht, A.: Einbindung von Spurenelementen in Portlandzementstein. In: Schriftenreihe Aachener Beiträge zur Bauforschung, Institut für Bauforschung der RWTH Aachen (2012), zugl.: Aachen, technische Hochschule, Dissertation 2012, ISBN 3-86130-635-2

Tabelle A1: dynamische Viskosität des Wassers  
/Gri06/

Temperatur (T)	dynamische Viskosität ( $\eta$ )
°C	N·s/m <sup>2</sup>
1	2
0	$1,64 \times 10^{-03}$
5*	$1,45 \times 10^{-03}$
10	$1,29 \times 10^{-03}$
15*	$1,15 \times 10^{-03}$
20	$1,03 \times 10^{-03}$
25*	$9,26 \times 10^{-04}$
30	$8,35 \times 10^{-04}$
35*	$7,57 \times 10^{-04}$
40	$6,87 \times 10^{-04}$

\*: nach Gleichung (50) interpoliert

Tabelle A2: Spezifische Diffusionskoeffizienten für Metallionen und Anionen

Parameter	$D_{0, 25\text{ °C}}^{1)}$	$D_{0, 20\text{ °C}}^{2)}$	$D_{0, 10\text{ °C}}^{2)}$
-	m <sup>2</sup> /s		
1	2	3	4
Dihydrogenantimonat, $\text{H}_2\text{SbO}_4^-$	$8,25 \times 10^{-10}$	$7,29 \times 10^{-10}$	$5,63 \times 10^{-10}$
Hexahydroxoantimonat, $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$	$8,49 \times 10^{-10}$	$7,51 \times 10^{-10}$	$5,80 \times 10^{-10}$
Aluminium, $\text{Al}^{3+}$	$5,41 \times 10^{-10}$	$4,78 \times 10^{-10}$	$3,69 \times 10^{-10}$
Dihydrogenarsenat, $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$	$9,05 \times 10^{-10}$	$8,00 \times 10^{-10}$	$6,18 \times 10^{-10}$
Barium, $\text{Ba}^{2+}$	$8,47 \times 10^{-10}$	$7,49 \times 10^{-10}$	$5,78 \times 10^{-10}$
Blei, $\text{Pb}^{2+}$	$9,45 \times 10^{-10}$	$8,36 \times 10^{-10}$	$6,45 \times 10^{-10}$
Cadmium, $\text{Cd}^{2+}$	$7,19 \times 10^{-10}$	$6,36 \times 10^{-10}$	$4,91 \times 10^{-10}$
Calcium, $\text{Ca}^{2+}$	$7,92 \times 10^{-10}$	$7,00 \times 10^{-10}$	$5,41 \times 10^{-10}$
Carbonat, $\text{CO}_3^{2-}$	$9,23 \times 10^{-10}$	$8,16 \times 10^{-10}$	$6,30 \times 10^{-10}$
Hydrogencarbonat, $\text{HCO}_3^-$	$1,19 \times 10^{-9}$	$1,05 \times 10^{-9}$	$8,09 \times 10^{-10}$
Hydronium, $\text{H}^+$	$9,31 \times 10^{-9}$	$8,23 \times 10^{-9}$	$6,36 \times 10^{-9}$
Chlorid, $\text{Cl}^-$	$2,03 \times 10^{-9}$	$1,80 \times 10^{-9}$	$1,39 \times 10^{-9}$
Chrom, $\text{Cr}^{3+}$	$5,95 \times 10^{-10}$	$5,26 \times 10^{-10}$	$4,06 \times 10^{-10}$
Chromat, $\text{CrO}_4^{2-}$	$1,13 \times 10^{-9}$	$1,00 \times 10^{-9}$	$7,73 \times 10^{-10}$
Fluorid, $\text{F}^-$	$1,48 \times 10^{-9}$	$1,30 \times 10^{-9}$	$1,01 \times 10^{-9}$
Hydroxid, $\text{OH}^-$	$5,27 \times 10^{-9}$	$4,66 \times 10^{-9}$	$3,60 \times 10^{-9}$
Kalium, $\text{K}^+$	$1,96 \times 10^{-9}$	$1,73 \times 10^{-9}$	$1,34 \times 10^{-9}$
Kobalt, $\text{Co}^{2+}$	$7,32 \times 10^{-10}$	$6,47 \times 10^{-10}$	$5,00 \times 10^{-10}$
Kupfer, $\text{Cu}^{2+}$	$7,14 \times 10^{-10}$	$6,31 \times 10^{-10}$	$4,88 \times 10^{-10}$
Natrium, $\text{Na}^+$	$1,33 \times 10^{-9}$	$1,18 \times 10^{-9}$	$9,11 \times 10^{-10}$
Nickel, $\text{Ni}^{2+}$	$6,61 \times 10^{-10}$	$5,84 \times 10^{-10}$	$4,51 \times 10^{-10}$
Selenat, $\text{SeO}_4^{2-}$	$1,01 \times 10^{-9}$	$8,91 \times 10^{-10}$	$6,88 \times 10^{-10}$
Sulfat, $\text{SO}_4^{2-}$	$1,07 \times 10^{-9}$	$9,42 \times 10^{-10}$	$7,27 \times 10^{-10}$
Sulfit, $\text{SO}_3^{2-}$	$1,06 \times 10^{-9}$	$9,41 \times 10^{-10}$	$7,27 \times 10^{-10}$
Hydrogensulfid, $\text{HS}^-$	$1,73 \times 10^{-9}$	$1,53 \times 10^{-9}$	$1,18 \times 10^{-9}$
Thallium, $\text{Tl}^+$	$1,99 \times 10^{-9}$	$1,76 \times 10^{-9}$	$1,36 \times 10^{-9}$
Zink, $\text{Zn}^{2+}$	$7,03 \times 10^{-10}$	$6,22 \times 10^{-10}$	$4,80 \times 10^{-10}$

1): aus /Lid95/

2): nach Gleichung (49) umgerechnet



Tabelle A3: Informationen und Simulationsergebnisse (für Chrom) der ausgewählten Proben

lfd. Nr.	Material	Bindemittel	Steigung in lgJ-Igt-Diagramm	Elutionszeit	$E_{56d}$	$C_{2m,6M}$ nach DIBt	$C_{2m,6M}$ nach Überarbeitung	$C_{2m,1a}$ nach Überarbeitung
-	-	-	$\lg(\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d}))/\lg(\text{d})$	d	$\text{mg}/\text{m}^2$	$\mu\text{g}/\text{l}$	$\mu\text{g}/\text{l}$	$\mu\text{g}/\text{l}$
1	2	3	4	6	7	8	9	10
26	Mörtel	CEM I mit FA	-0,69	82	1,92	1,87	1,87	1,85
39	Mörtel	CEM III/A mit FA	-0,70	84	2,21	2,15	2,05	2,01
69	Beton	CEM I mit FA, FM	-0,59	53	1,73	1,68	1,78	1,91
89	Mörtel	CEM II - L	-0,77	64	0,51	0,50	0,51	0,47
90	Mörtel	CEM I	-0,78	64	6,24	6,05	6,18	5,68
91	Mörtel	CEM I	-0,72	64	3,13	3,04	2,91	2,80
92	Mörtel	CEM I - HS	-0,80	64	0,60	0,59	0,59	0,54
93	Beton	CEM I	-0,65	64	3,88	3,77	3,92	4,03
99	Beton	CEM I	-0,62	56	1,12	1,08	1,14	1,19
117	Beton	CEM I ohne CR	-0,69	56	3,64	3,53	3,54	3,51
120	Beton	CEM I zus. CR	-0,69	56	5,32	5,16	5,36	5,32
123	Beton	CEM I zus. CR	-0,75	56	5,64	5,47	5,87	5,54
141	Beton	CEM I mit FM	-0,39	81	1,40	1,36	1,52	1,90
147	Beton	CEM I mit FM	-0,53	81	1,43	1,38	1,53	1,71
156	Zementstein	CEM I mit FM	-0,69	53	2,14	2,07	2,04	2,02
162	Zementstein	CEM I mit FM	-0,66	53	2,34	2,27	2,34	2,38
168	Mörtel	CEM I mit FM	-0,58	53	1,56	1,52	1,47	1,58
174	Mörtel	CEM I mit FM	-0,60	53	1,97	1,91	1,93	2,05
250	Beton	CEM I	-0,74	56	3,02	2,93	2,83	2,70
266	Beton	CEM III/A	-0,57	64	0,64	0,62	0,65	0,71
272	Mörtel	Armierungsputz	-0,52	36	1,69	1,64	1,96	2,23
290	Mörtel	Armierungsputz	-0,44	64	1,41	1,36	1,40	1,70

CR: Chromatreduzierer, FA: Flugasche, FM:Fließmittel

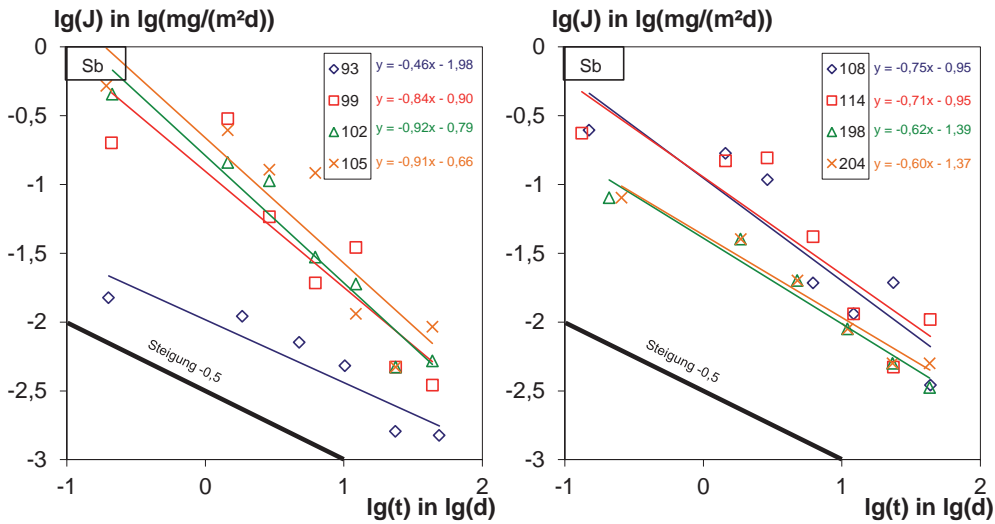
 $C_{2m,6M}$  nach DIBt: mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration, abgeschätzt nach DIBt-Modell:  $C_{2m,6M} = E_{56d} \cdot 0,97$  $C_{2m,6M}$  nach Überarbeitung: mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration gemäß neuer Modellierung mit genauere Abbildung des Freisetzungsvorgangs $C_{2m,1a}$  nach Überarbeitung: mittlere Kontaktgrundwasserkonzentration gemäß neuer Modellierung bei einer Verlängerung des Bewertungszeitraum auf 1 Jahr

Tabelle A4: Informationen der Proben

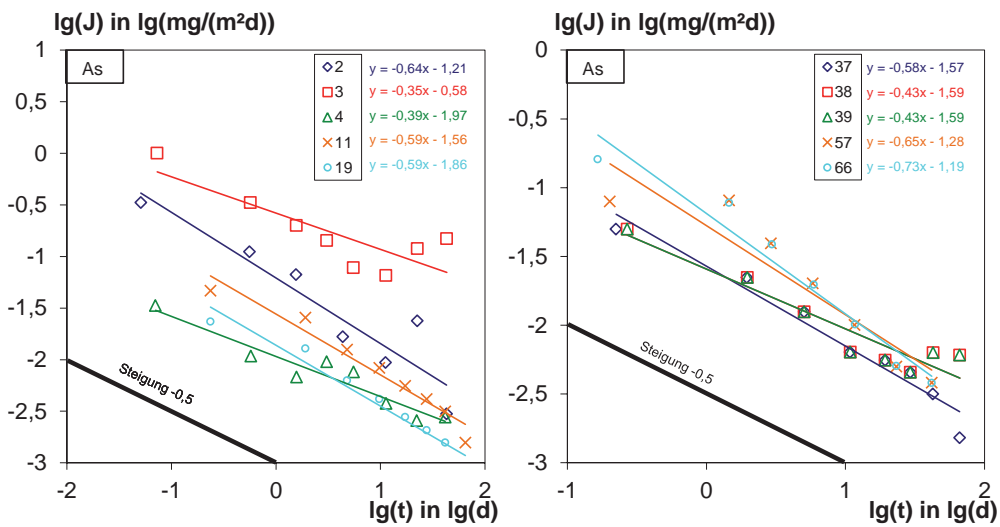
lfd. Nr.	Material	Bestandteil	lfd. Nr.	Material	Bestandteil	lfd. Nr.	Material	Bestandteil
1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	Beton	CEM I	69	Beton	CEM I mit FA, FM	207	Beton	CEM I mit FA
2	Beton	CEM I mit FA	72	Beton	CEM I mit FM, BS	208	Beton	CEM I mit FA
3	Beton	CEM I mit FA	81	Mörtel	CEM I	209	Beton	CEM I mit FA
4	Beton	CEM I mit MHS	82	Mörtel	CEM I	210	Beton	CEM I mit FA
5	Beton	CEM III/A	83	Mörtel	CEM I	211	Beton	CEM I mit FA
6	Beton	CEM III/A mit FA	84	Mörtel	CEM I	212	Beton	CEM I mit FA
9	Mörtel	CEM I	85	Mörtel	CEM I	213	Beton	CEM I mit FA
10	Mörtel	CEM I	86	Mörtel	CEM I	214	Beton	CEM I mit FA
11	Mörtel	CEM I	87	Mörtel	CEM I	223	Beton	CEM I
12	Mörtel	CEM I	88	Mörtel	CEM I	226	Beton	CEM I
13	Mörtel	CEM I	89	Mörtel	CEM II - L	229	Beton	CEM I
14	Mörtel	CEM I	90	Mörtel	CEM I	232	Beton	CEM I
17	Mörtel	CEM I	91	Mörtel	CEM I	235	Beton	CEM I
18	Mörtel	CEM I	92	Mörtel	CEM I - HS	238	Beton	CEM I
19	Mörtel	CEM I	93	Beton	CEM I	241	Beton	CEM I
22	Mörtel	CEM I	96	Beton	CEM I ohne CR	244	Beton	CEM I
23	Mörtel	CEM I	99	Beton	CEM I enth. CR	247	Beton	CEM I
24	Mörtel	CEM I	102	Beton	CEM I zus. CR	250	Beton	CEM I
25	Mörtel	CEM I mit FA	105	Beton	CEM I zus. CR	253	Beton	CEM I
26	Mörtel	CEM I mit FA	108	Beton	CEM I ohne CR	257	Beton	CEM I
27	Mörtel	CEM I mit FA	111	Beton	CEM I zus. CR	260	Beton	CEM III/A
28	Mörtel	CEM I mit FA	114	Beton	CEM I zus. CR	263	Beton	CEM III/A
29	Mörtel	CEM I mit FA	117	Beton	CEM I ohne CR	266	Beton	CEM III/A
30	Mörtel	CEM I mit FA	120	Beton	CEM I zus. CR	269	Mörtel	Armierungsputz
31	Mörtel	CEM I mit FA	123	Beton	CEM I zus. CR	272	Mörtel	Armierungsputz
32	Mörtel	CEM I mit FA	126	Beton	CEM I ohne CR	275	Mörtel	Armierungsputz
33	Mörtel	CEM I mit FA	129	Beton	CEM I enth. CR	278	Mörtel	Armierungsputz
34	Mörtel	CEM I mit FA	141	Beton	CEM I mit FM	281	Mörtel	Armierungsputz
35	Mörtel	CEM I mit FA	147	Beton	CEM I mit FM	284	Mörtel	Armierungsputz
36	Mörtel	CEM I mit FA	153	Zementstein	CEM I mit FM	287	Mörtel	Armierungsputz
37	Mörtel	CEM III/A	156	Zementstein	CEM I mit FM	290	Mörtel	Armierungsputz
38	Mörtel	CEM III/A mit FA	159	Zementstein	CEM I mit FM	291	Beton	CEM I mit FM
39	Mörtel	CEM III/A mit FA	162	Zementstein	CEM I mit FM	292	Beton	CEM I
42	Beton	CEM I mit FM	165	Mörtel	CEM I mit FM	293	Beton	CEM I mit FM
45	Beton	CEM I	168	Mörtel	CEM I mit FM	294	Beton	CEM I mit FM
48	Beton	CEM I mit FM	171	Mörtel	CEM I mit FM	295	Beton	CEM I mit FM
51	Beton	CEM I mit FM	174	Mörtel	CEM I mit FM	296	Beton	CEM I mit BB
54	Beton	CEM I mit FM	192	Beton	CEM I	297	Beton	CEM I mit FA, FM
57	Beton	CEM I mit FM	195	Beton	CEM I	298	Beton	CEM I mit FM, BS
60	Beton	CEM I mit BB	198	Beton	CEM I	299	Beton	CEM I
63	Beton	CEM I mit BB	201	Beton	CEM I	300	Beton	CEM I mit FM
66	Beton	CEM I mit FA, FM	204	Beton	CEM I mit FA	-	-	-

BB: Betonbruch, BS: Bauschutt, CR: Chromatreduzierer, FA: Flugasche, FM: Fließmittel, MHS: Metallhüttenschlacke

Die in den Legenden angegebenen Mischungsnummern werden in Tabelle A4 erläutert.



**Bild B1:** Darstellung der Auslaugkinetik von Antimon



**Bild B2:** Darstellung der Auslaugkinetik von Arsen

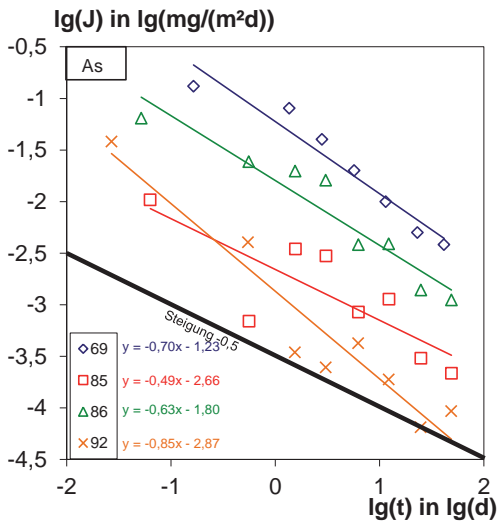


Bild B2: Fortsetzung

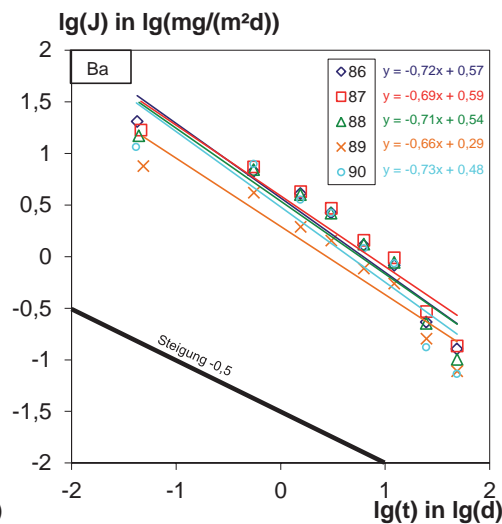
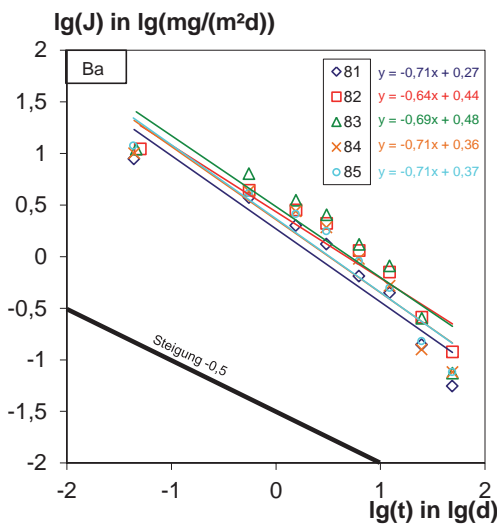
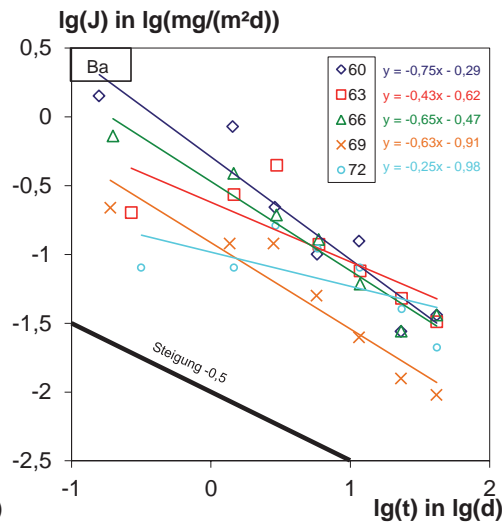
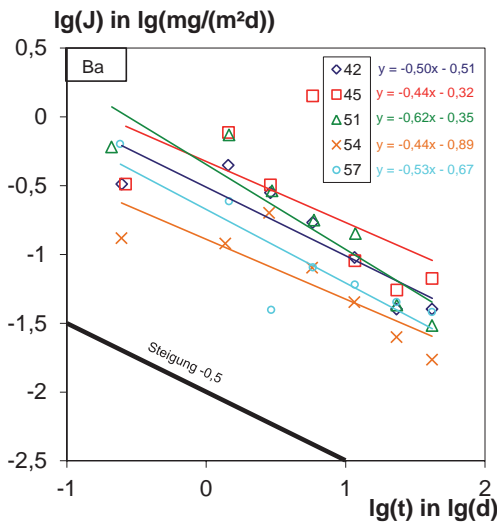


Bild B3: Darstellung der Auslaugkinetik von Barium

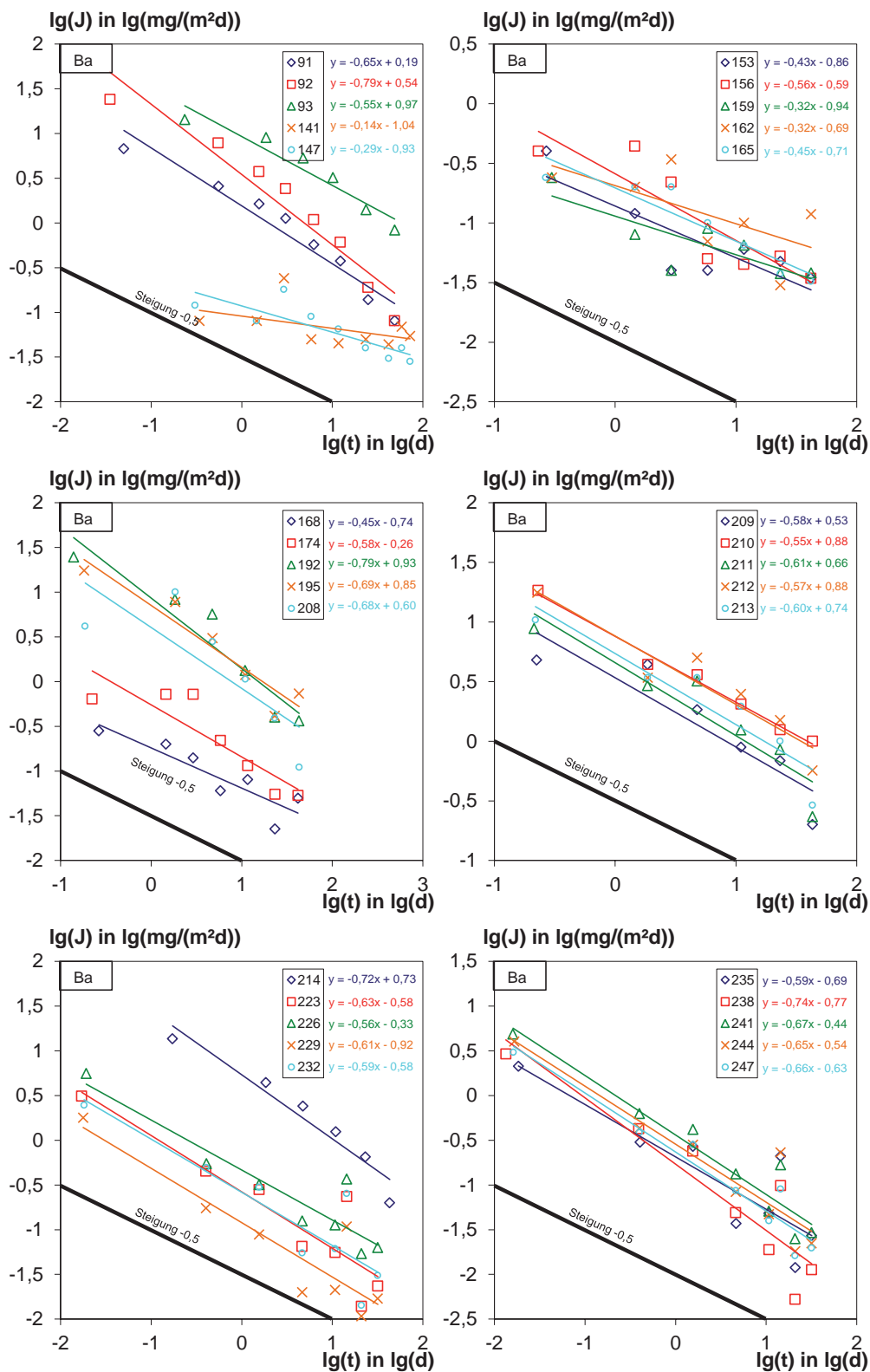


Bild B3: Fortsetzung 1

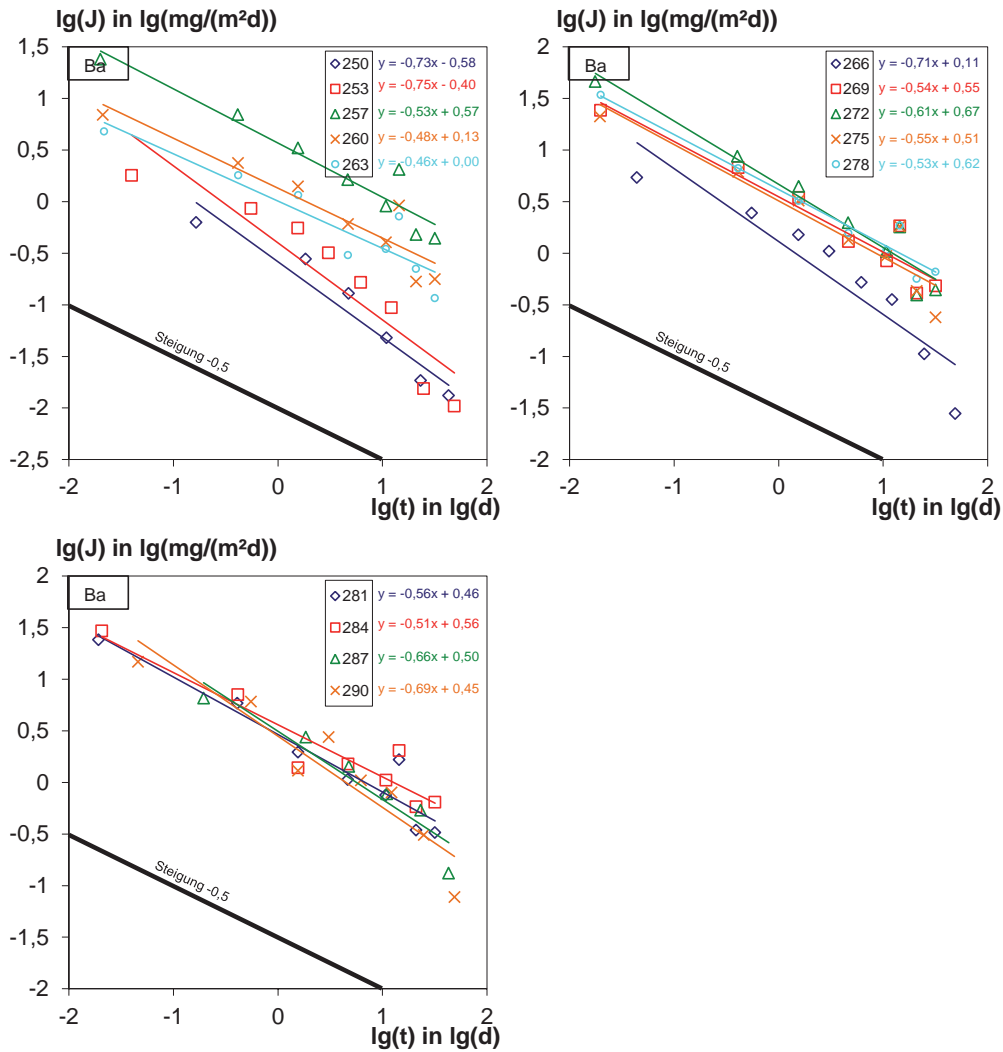


Bild B3: Fortsetzung 2

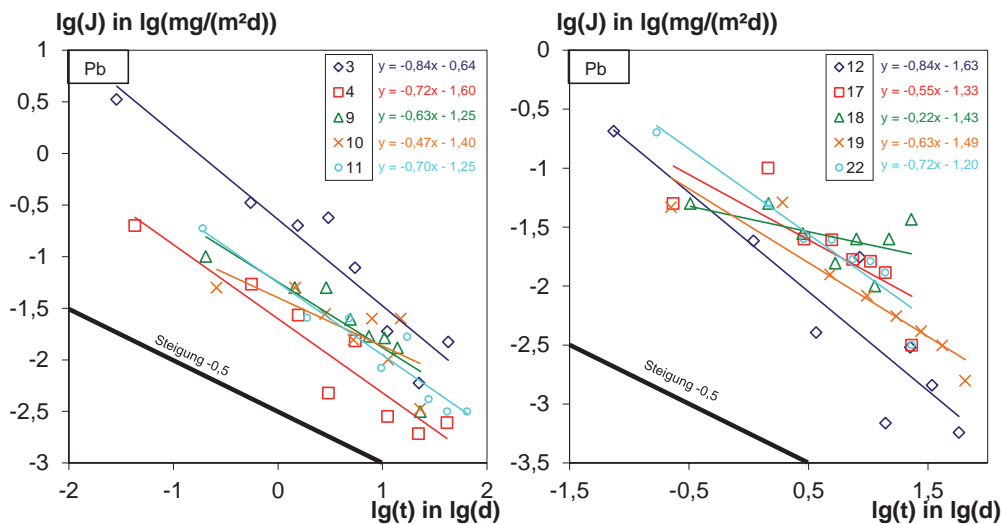


Bild B4: Darstellung der Auslaugkinetik von Blei

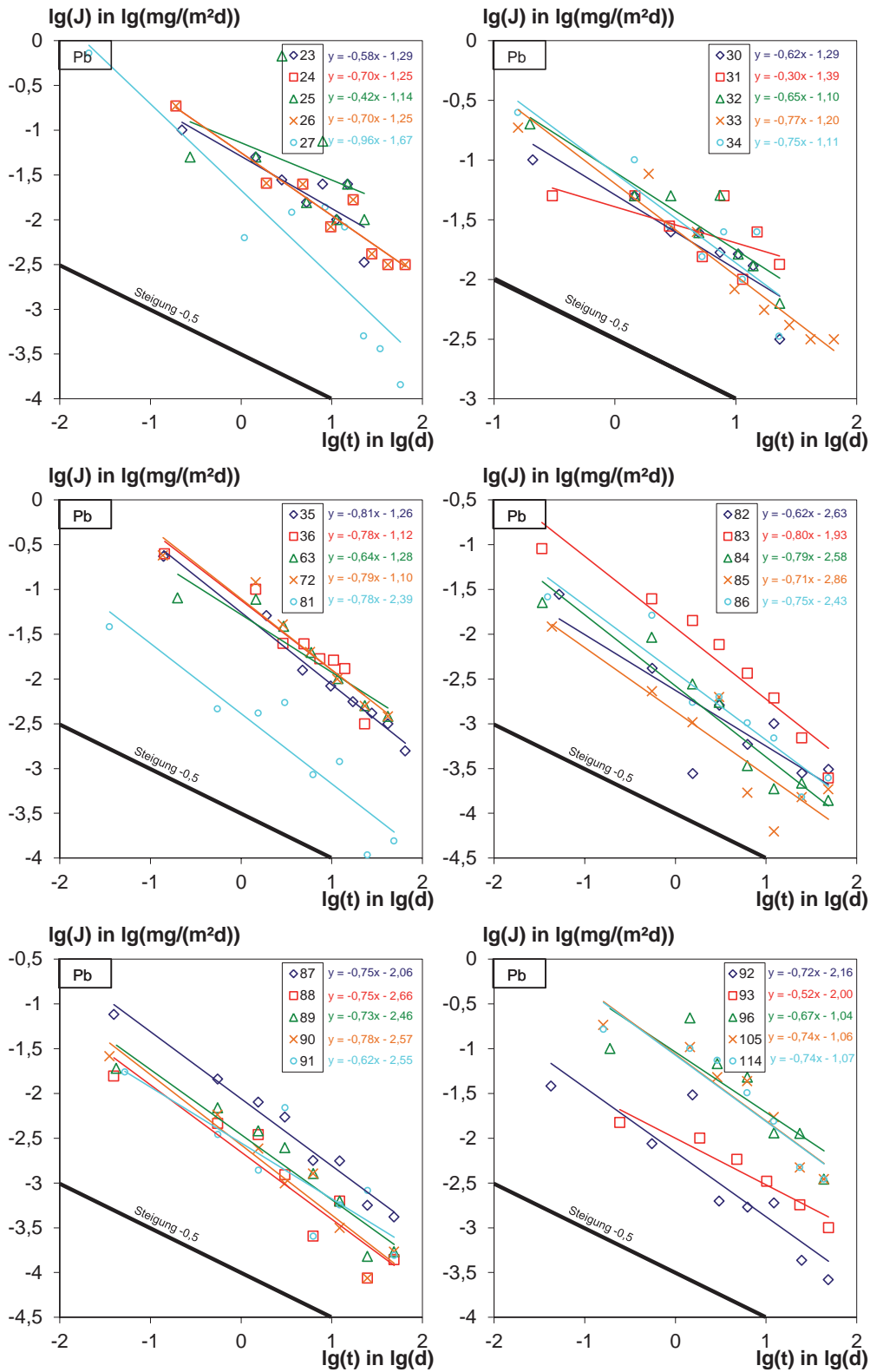


Bild B4: Fortsetzung 1

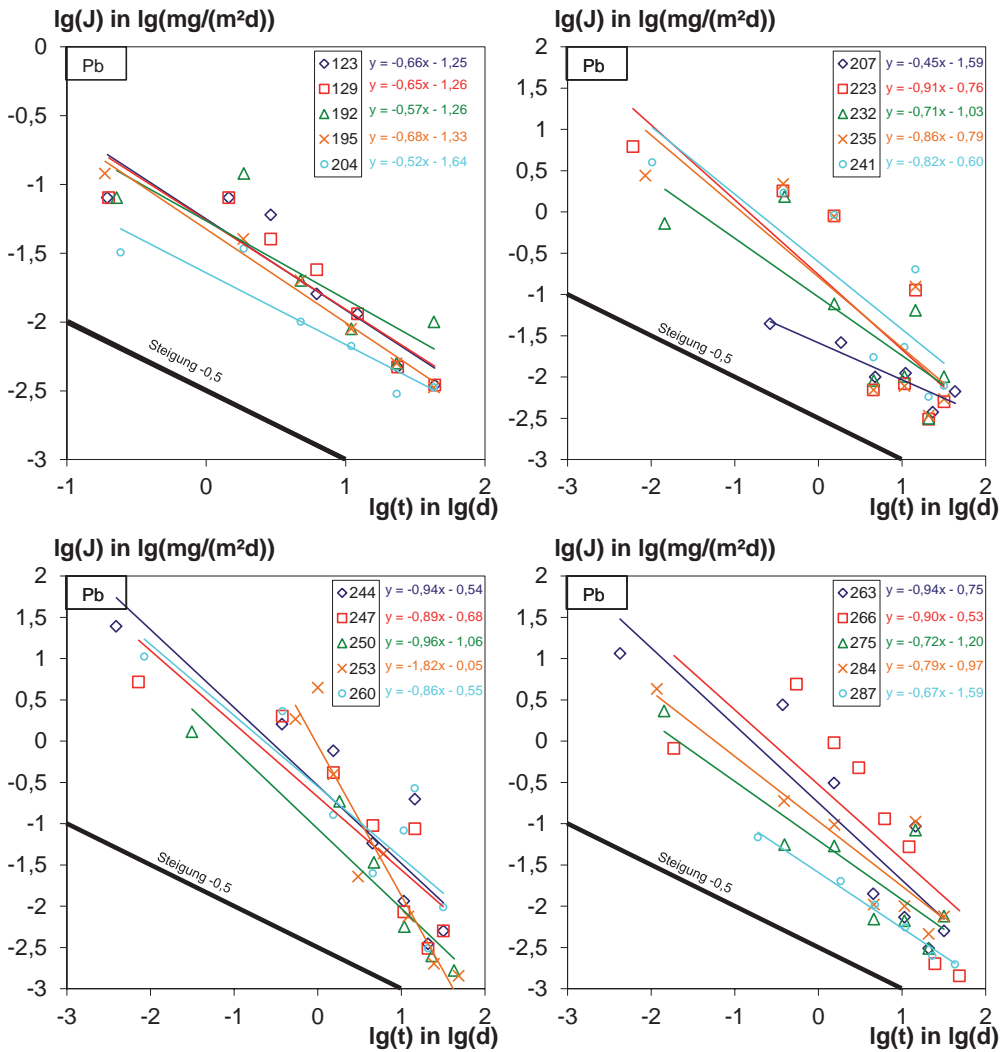


Bild B4: Fortsetzung 2

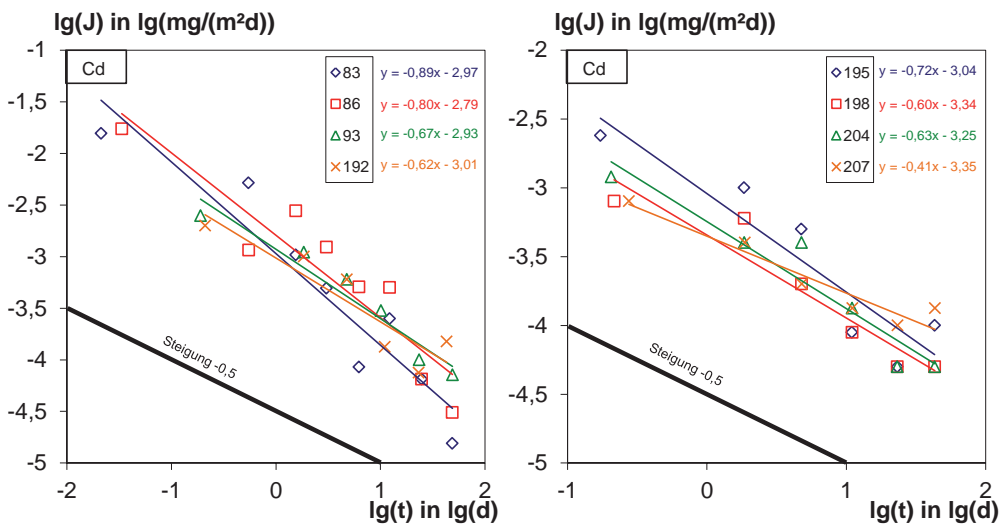
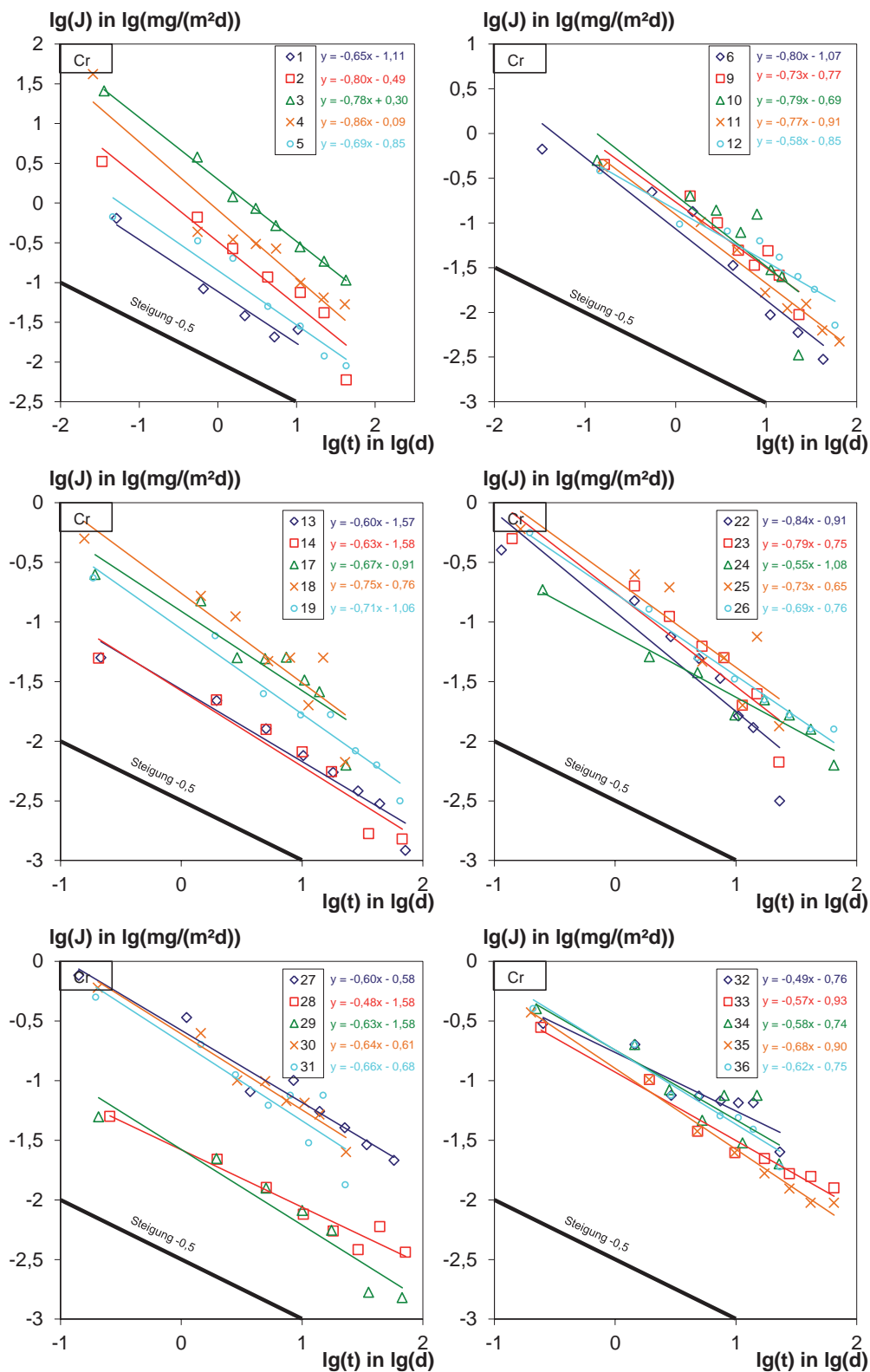


Bild B5: Darstellung der Auslaugkinetik von Cadmium





**Bild B6:** Darstellung der Auslaugkinetik von Chrom

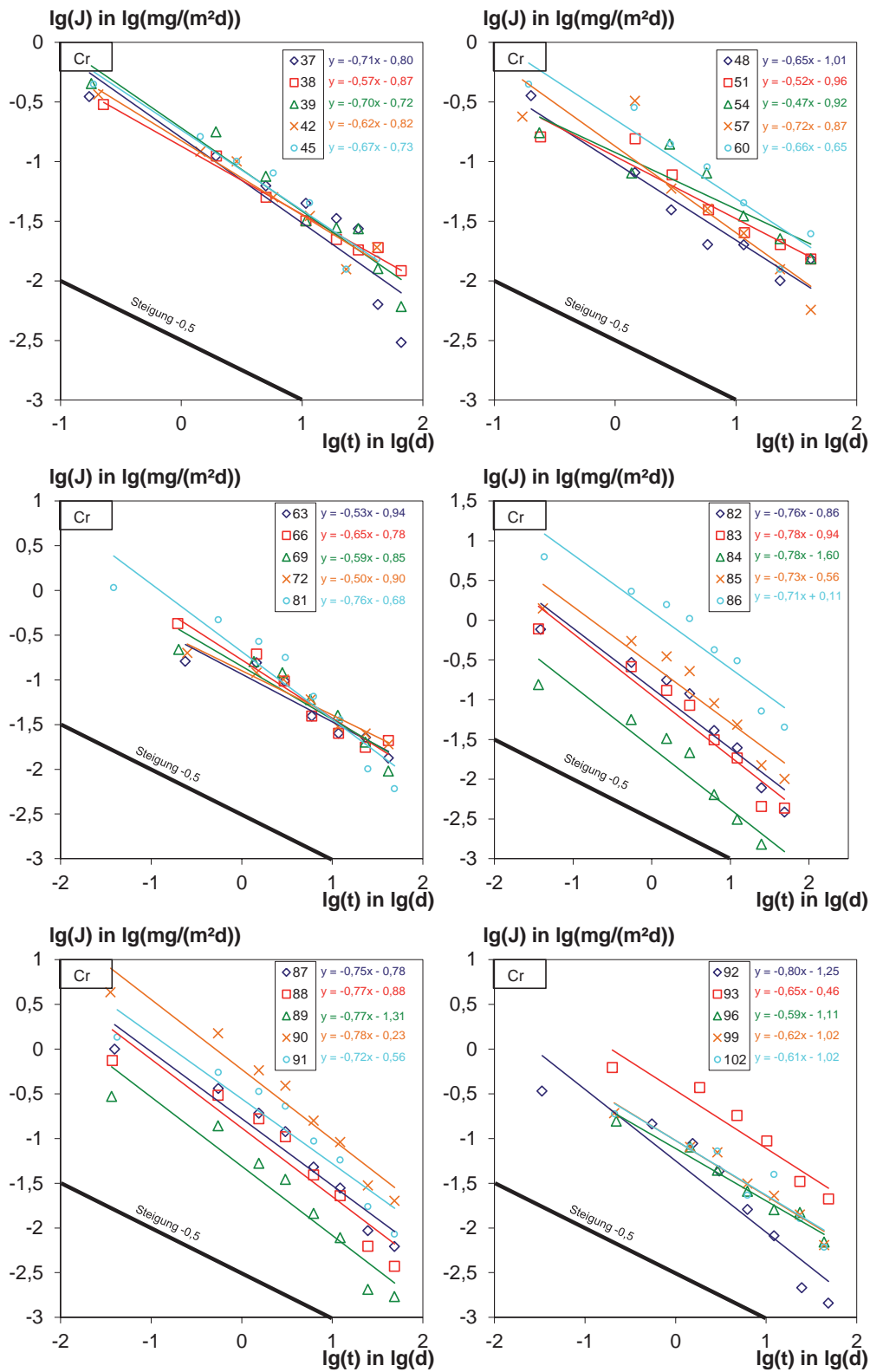


Bild B6: Fortsetzung 1

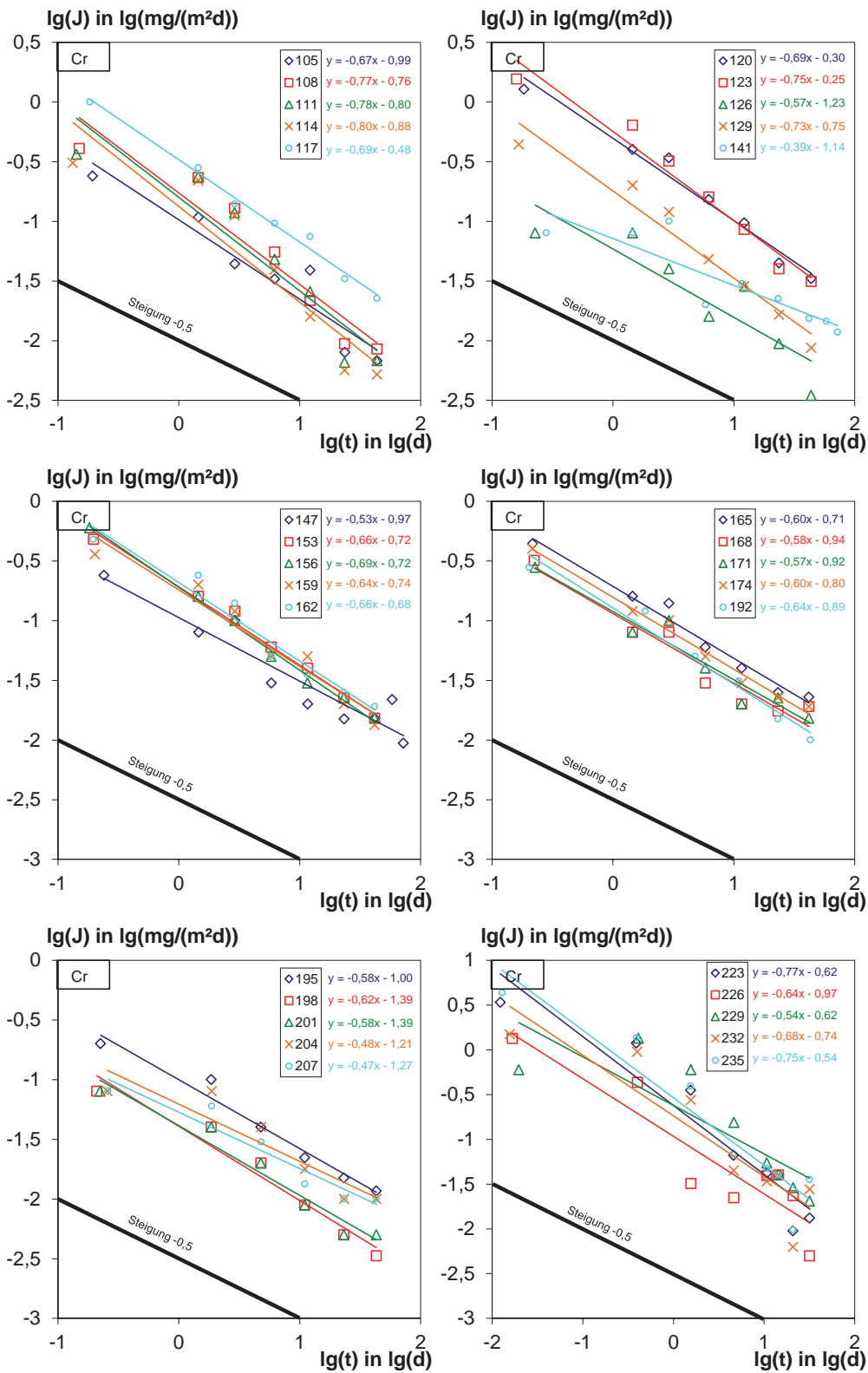


Bild B6: Fortsetzung 2

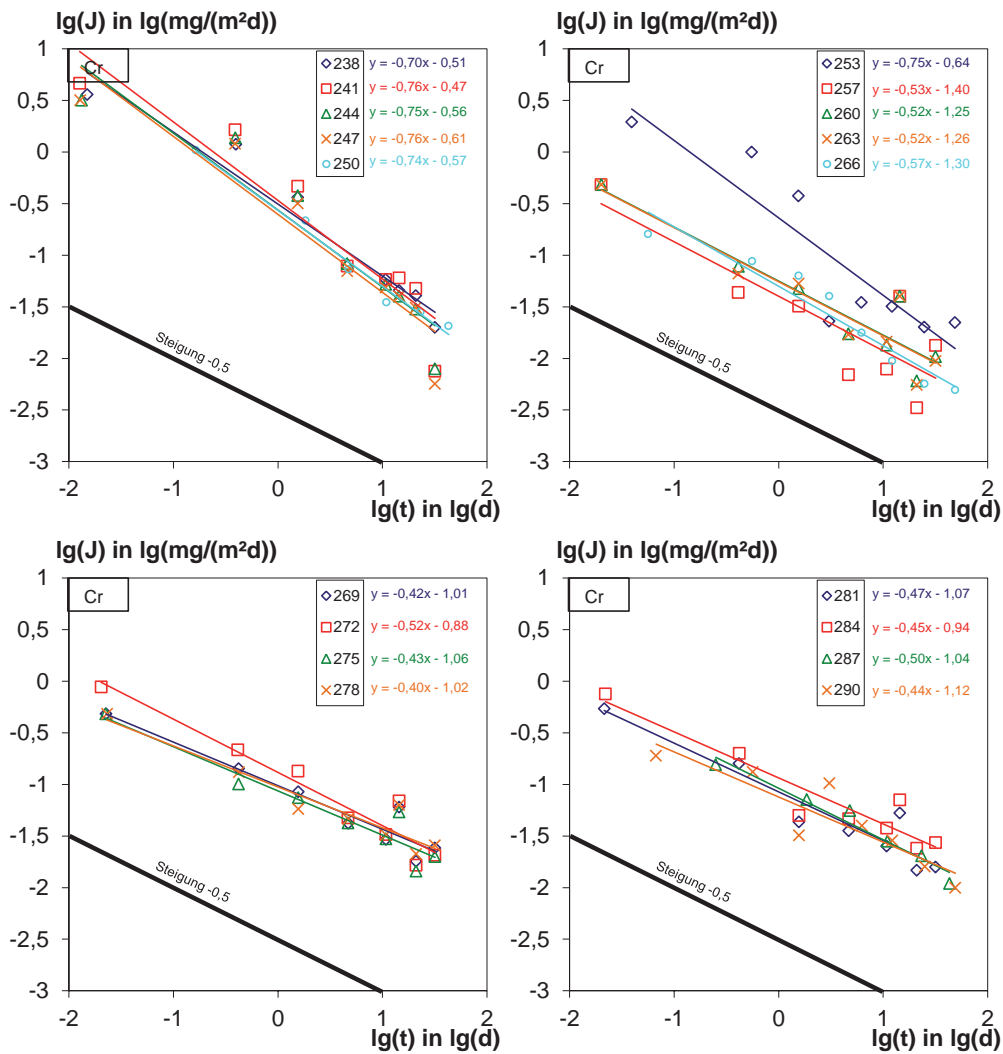


Bild B6: Fortsetzung 3

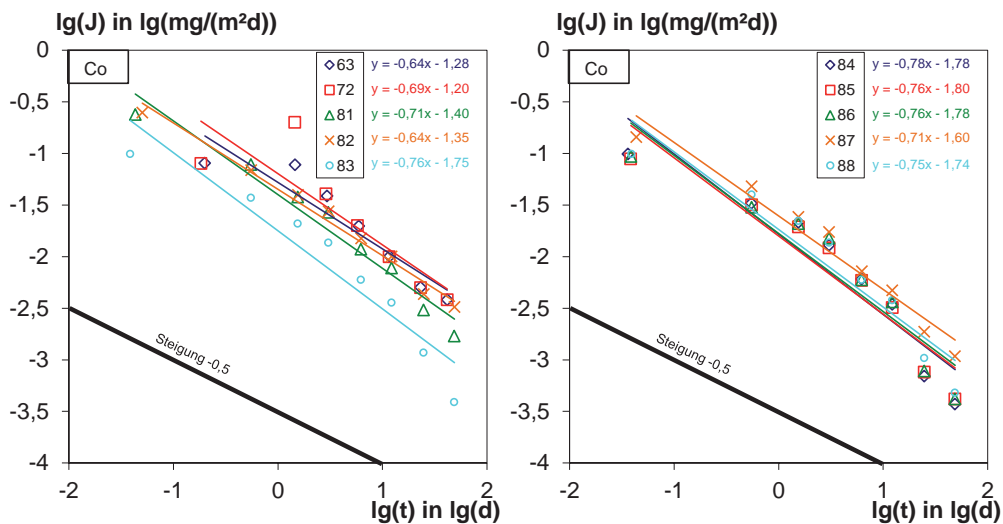
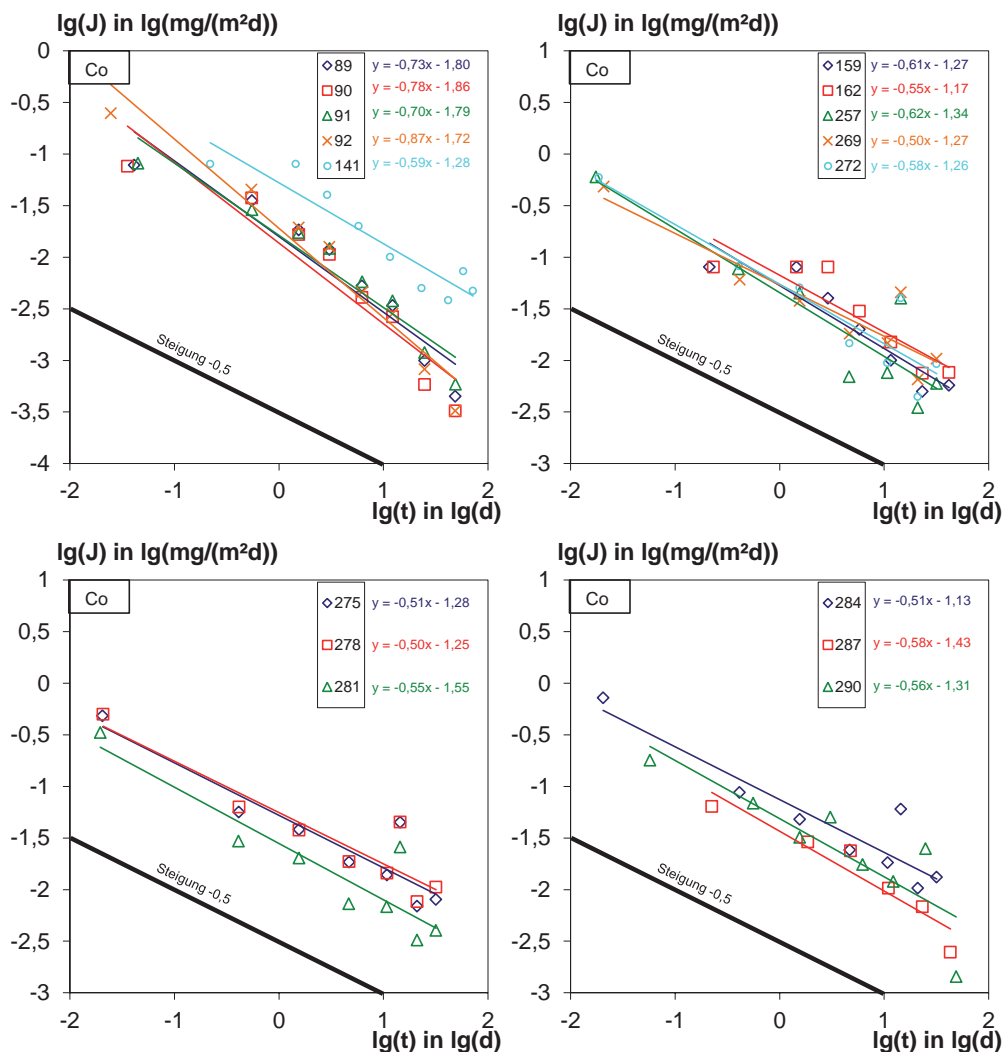
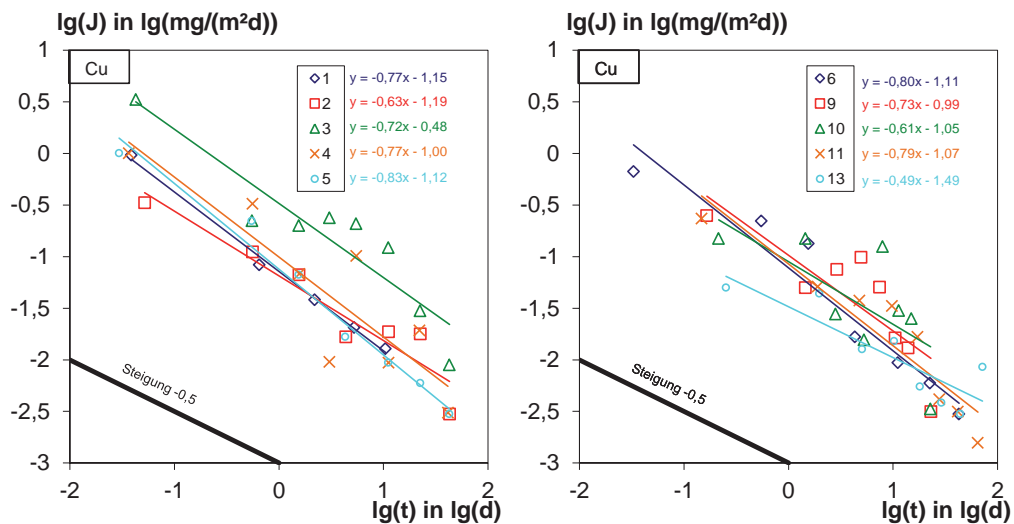


Bild B7: Darstellung der Auslaugkinetik von Cobalt



**Bild B7:** Fortsetzung



**Bild B8:** Darstellung der Auslaugkinetik von Kupfer

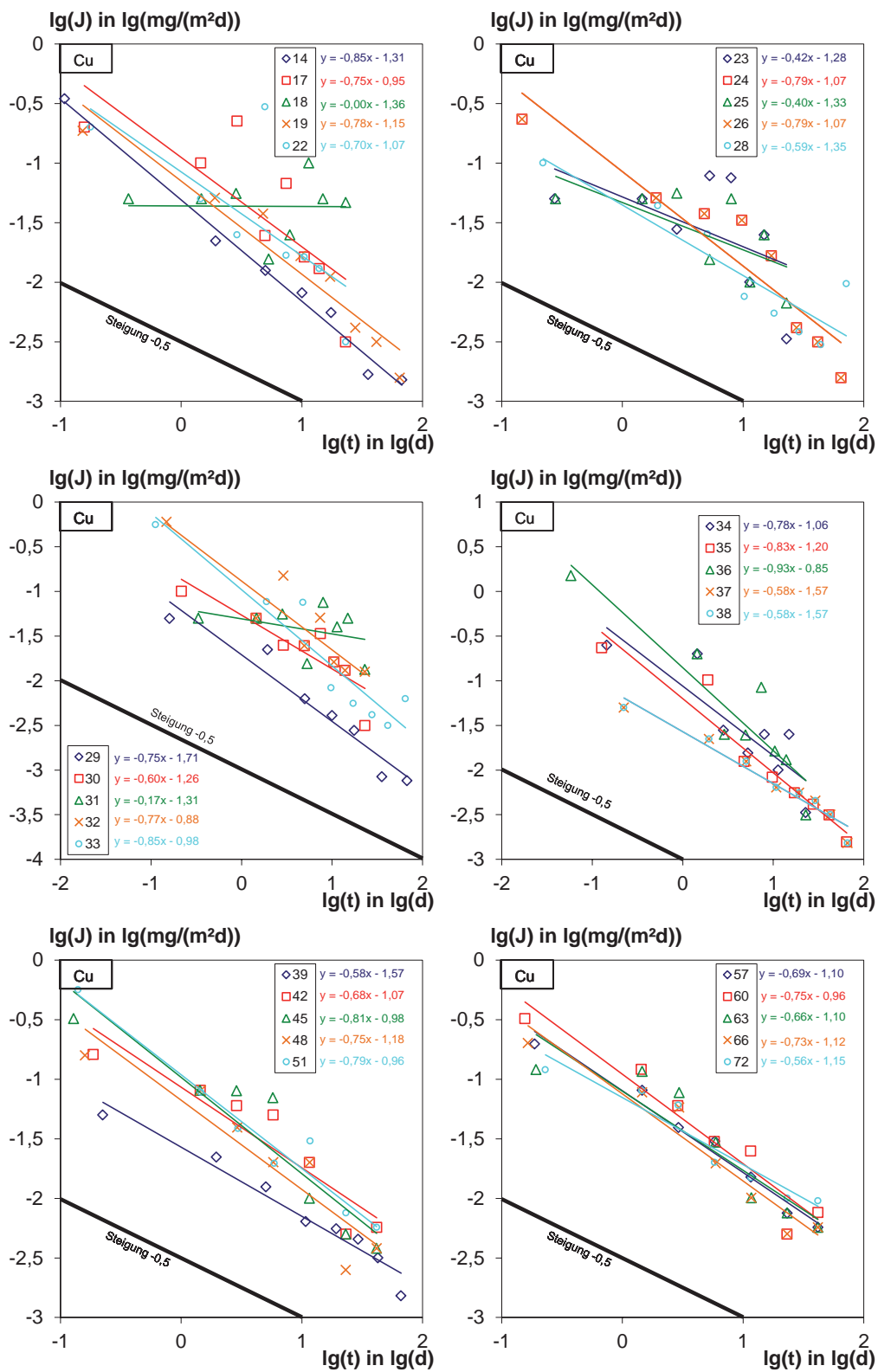


Bild B8: Fortsetzung 1

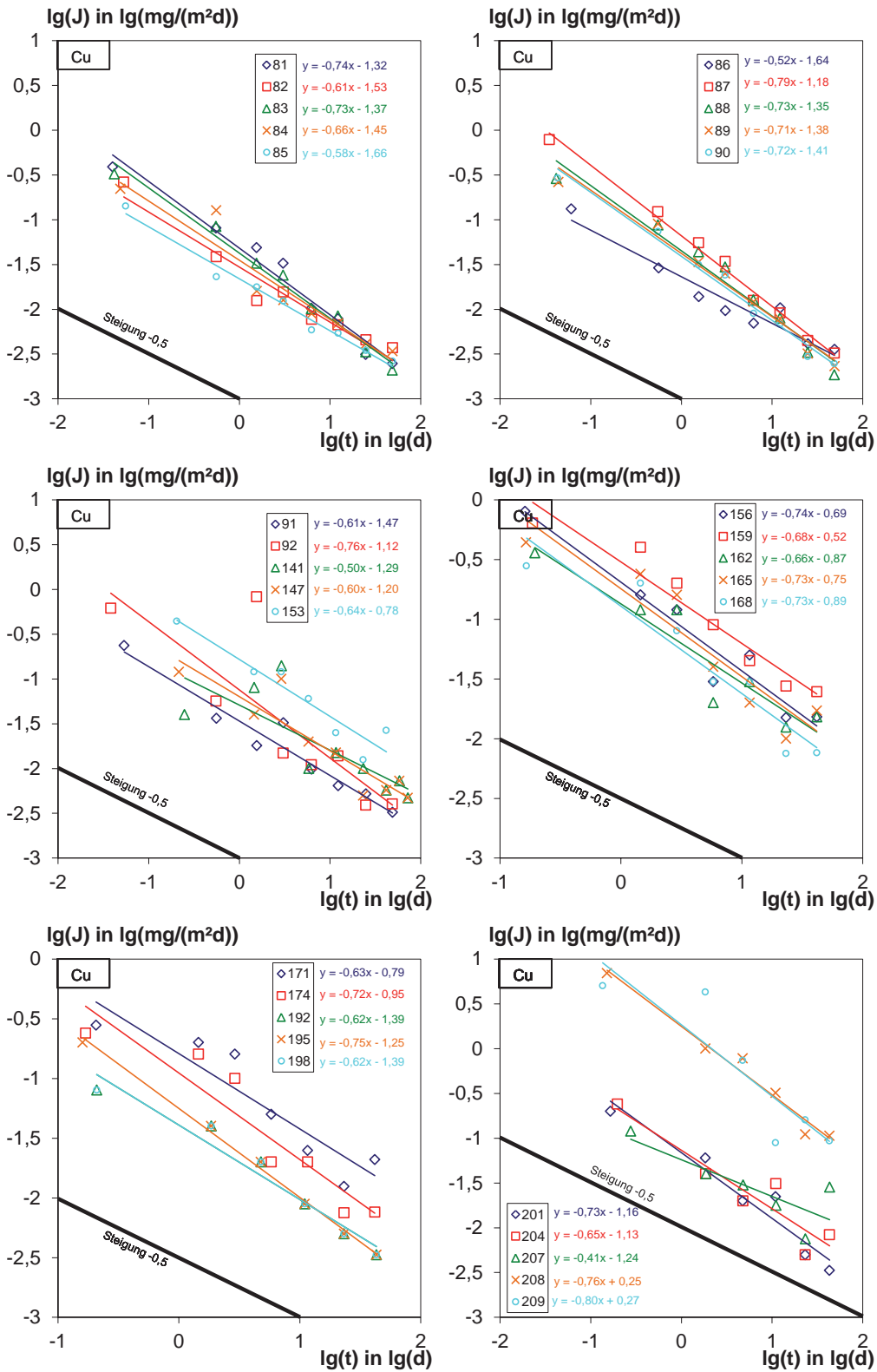


Bild B8: Fortsetzung 2

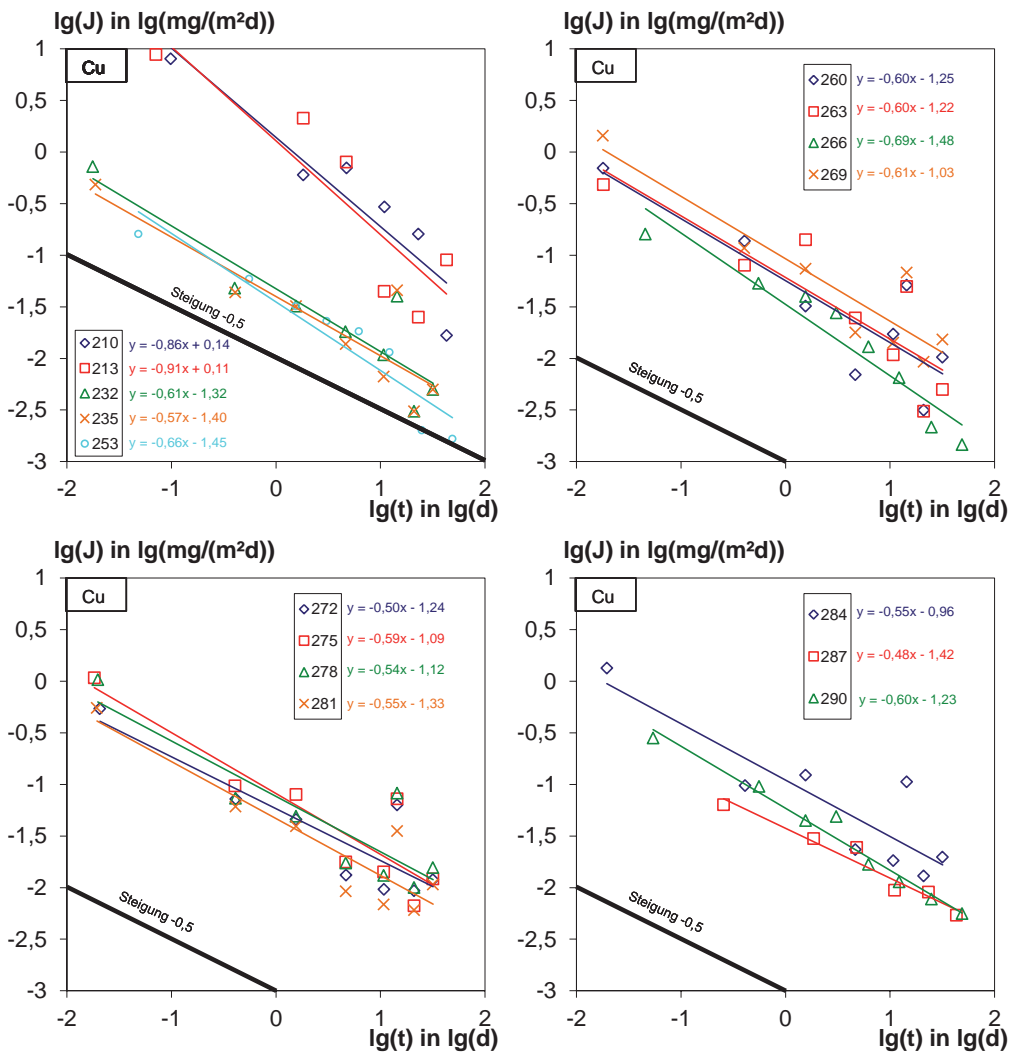


Bild B8: Fortsetzung 3

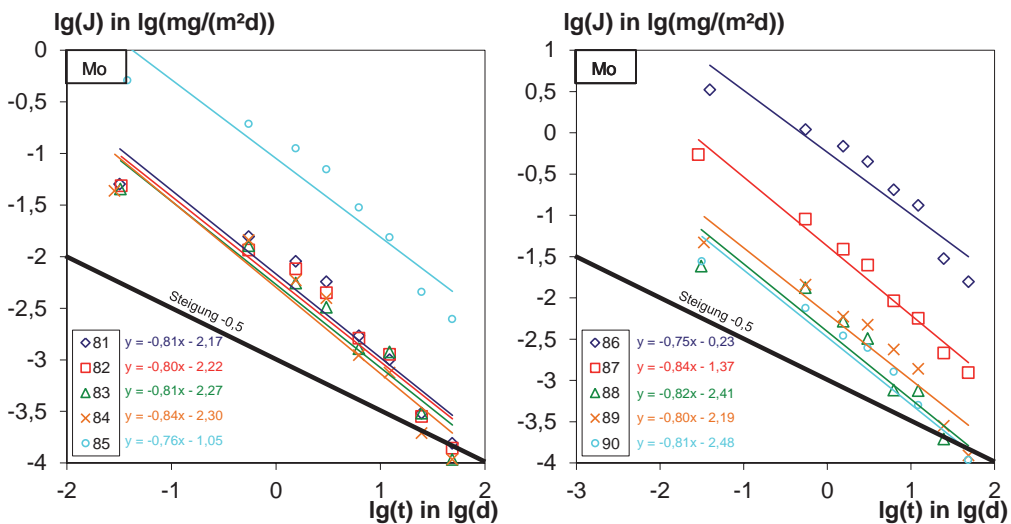


Bild B9: Darstellung der Auslaugkinetik von Molybdän



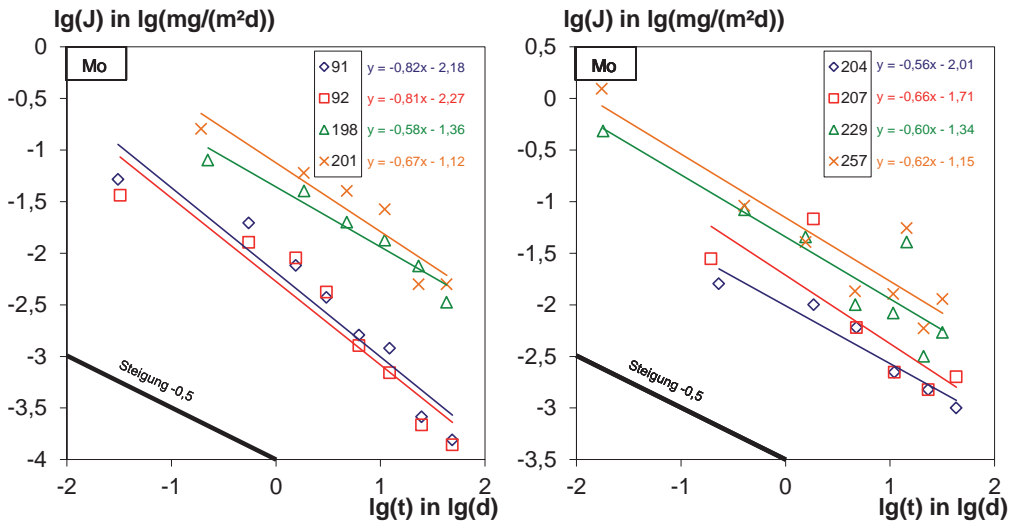


Bild B9: Fortsetzung

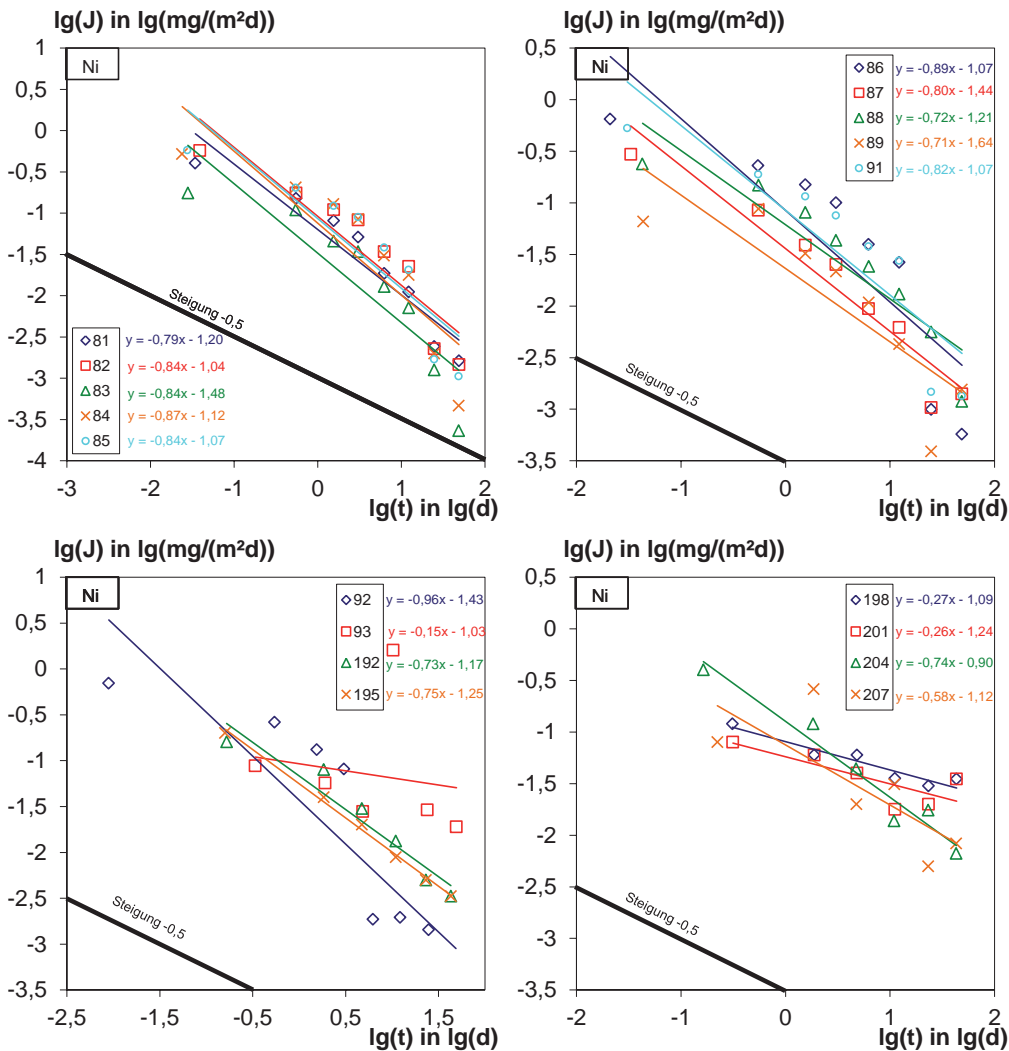


Bild B10: Darstellung der Auslaugkinetik von Nickel

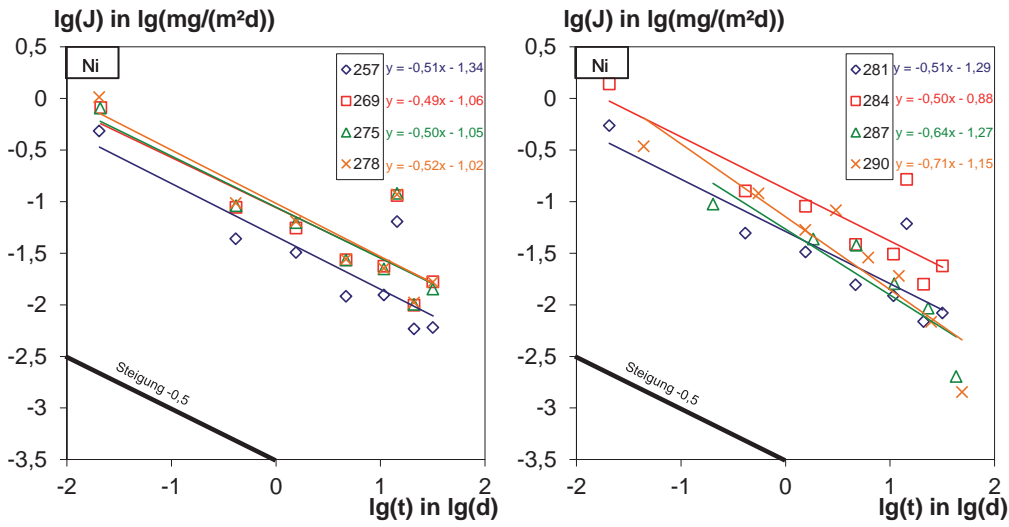


Bild B10: Fortsetzung

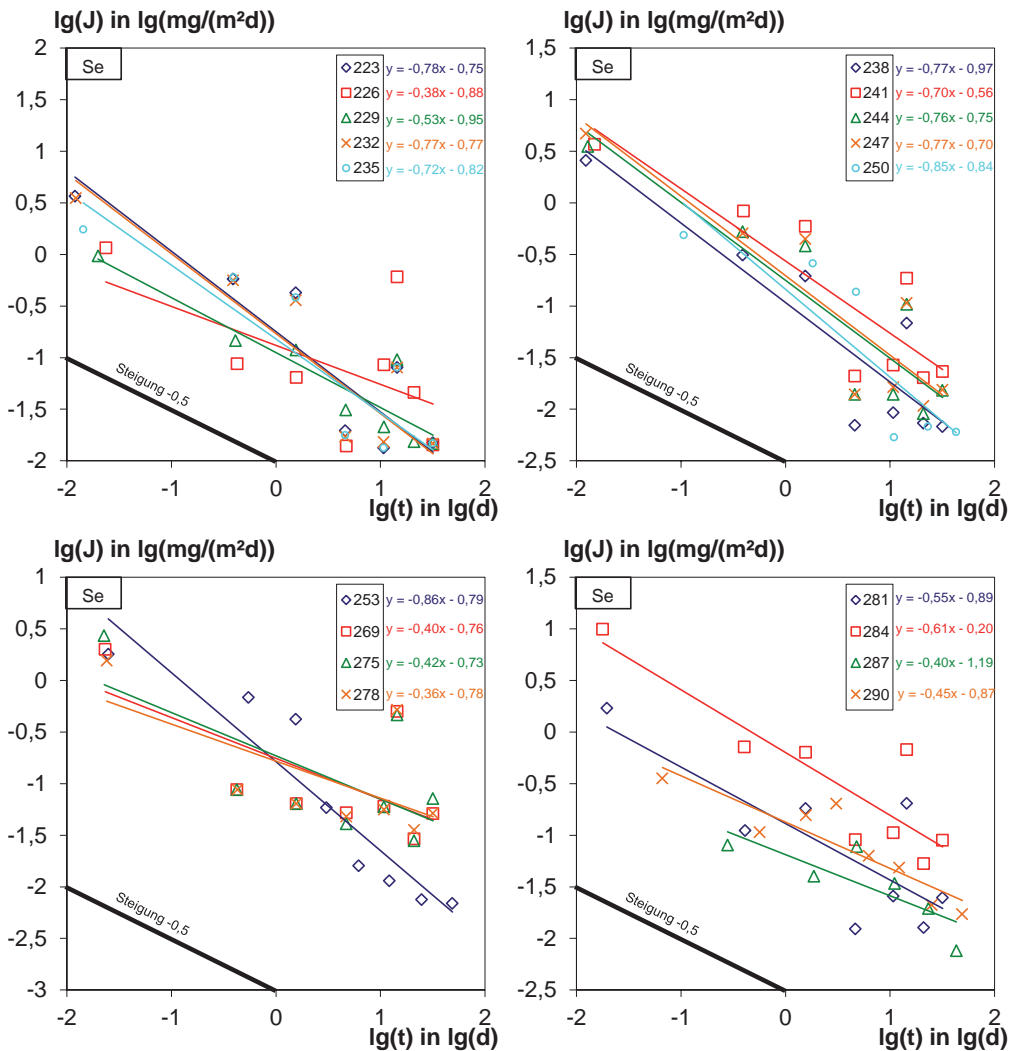
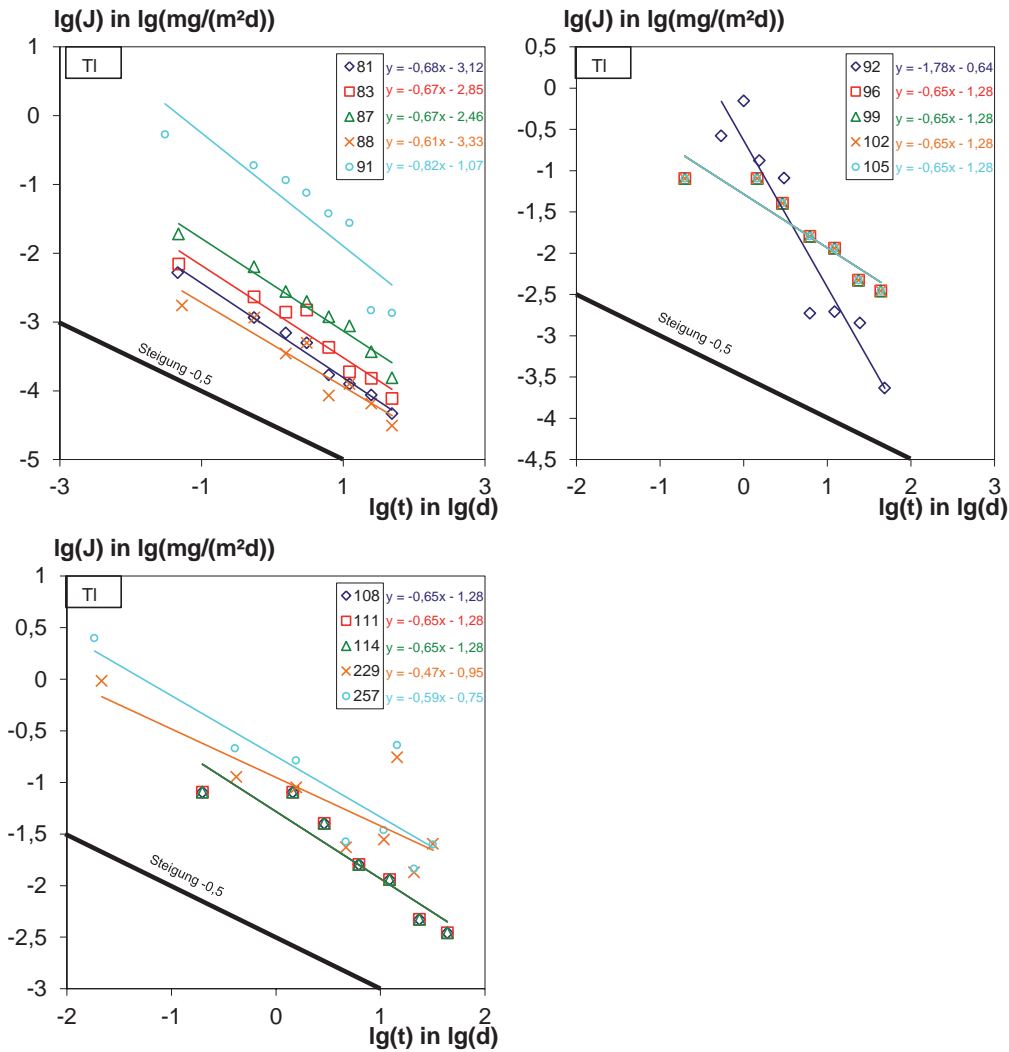
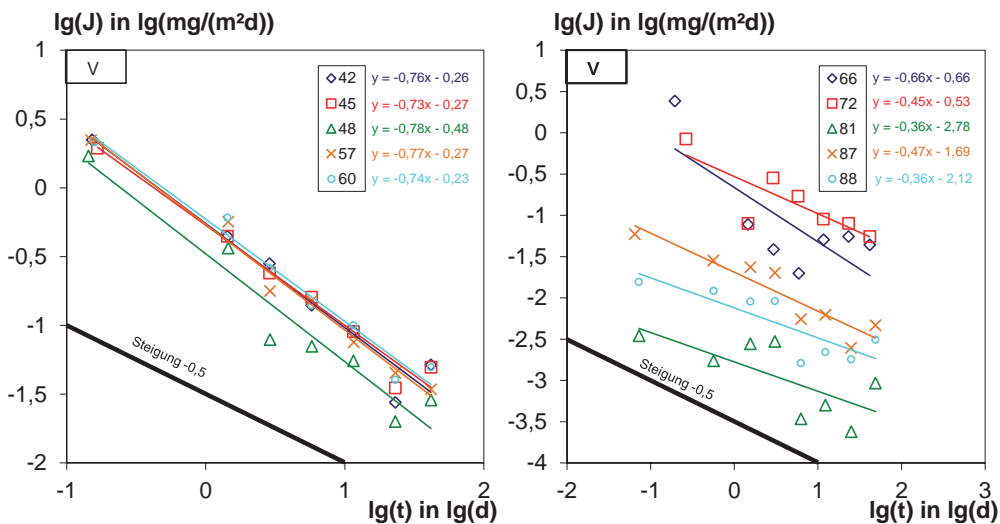


Bild B11: Darstellung der Auslaugkinetik von Selen



**Bild B12:** Darstellung der Auslaugkinetik von Thallium



**Bild B13:** Darstellung der Auslaugkinetik von Vanadium

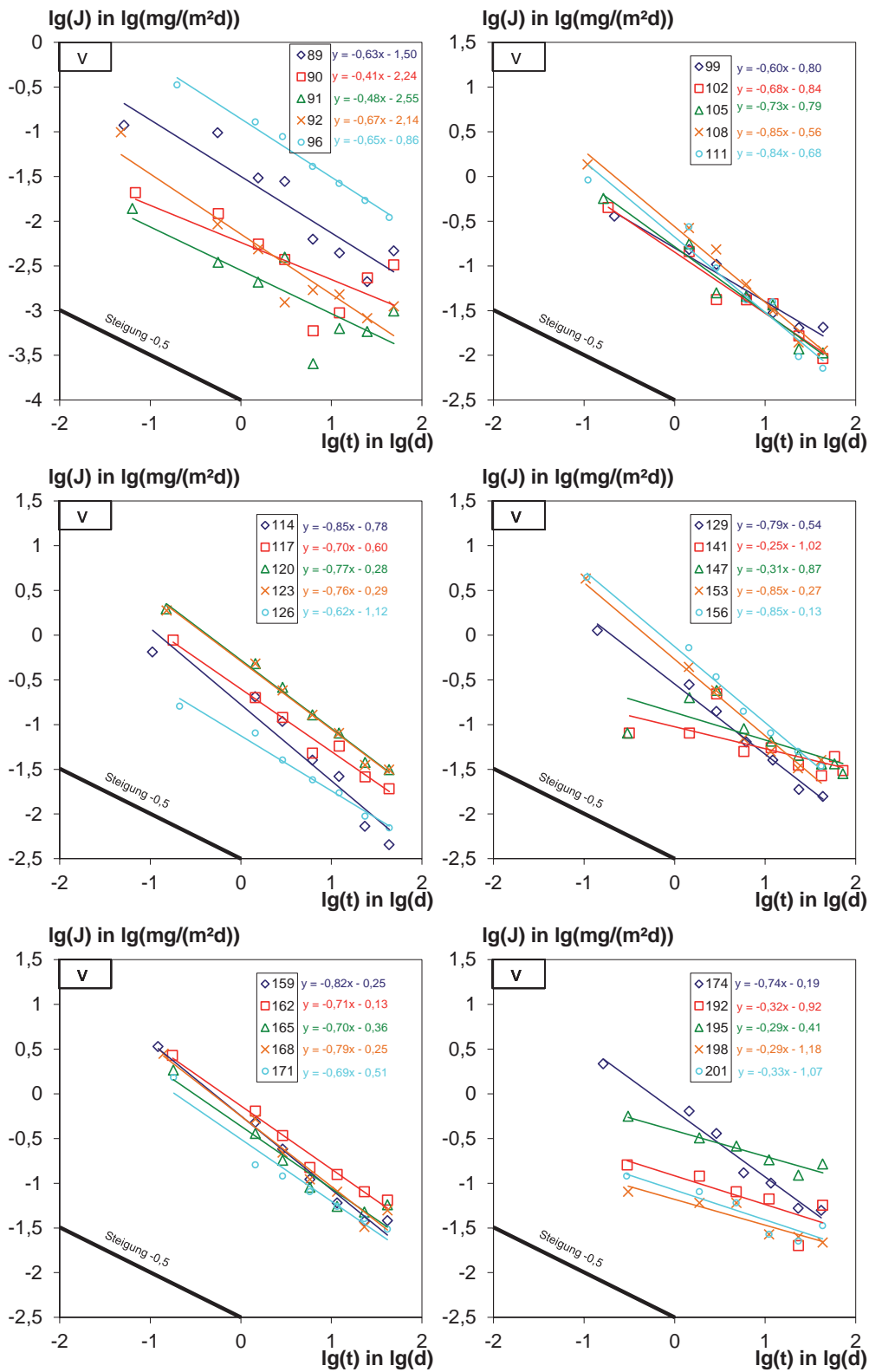


Bild B13: Fortsetzung 1

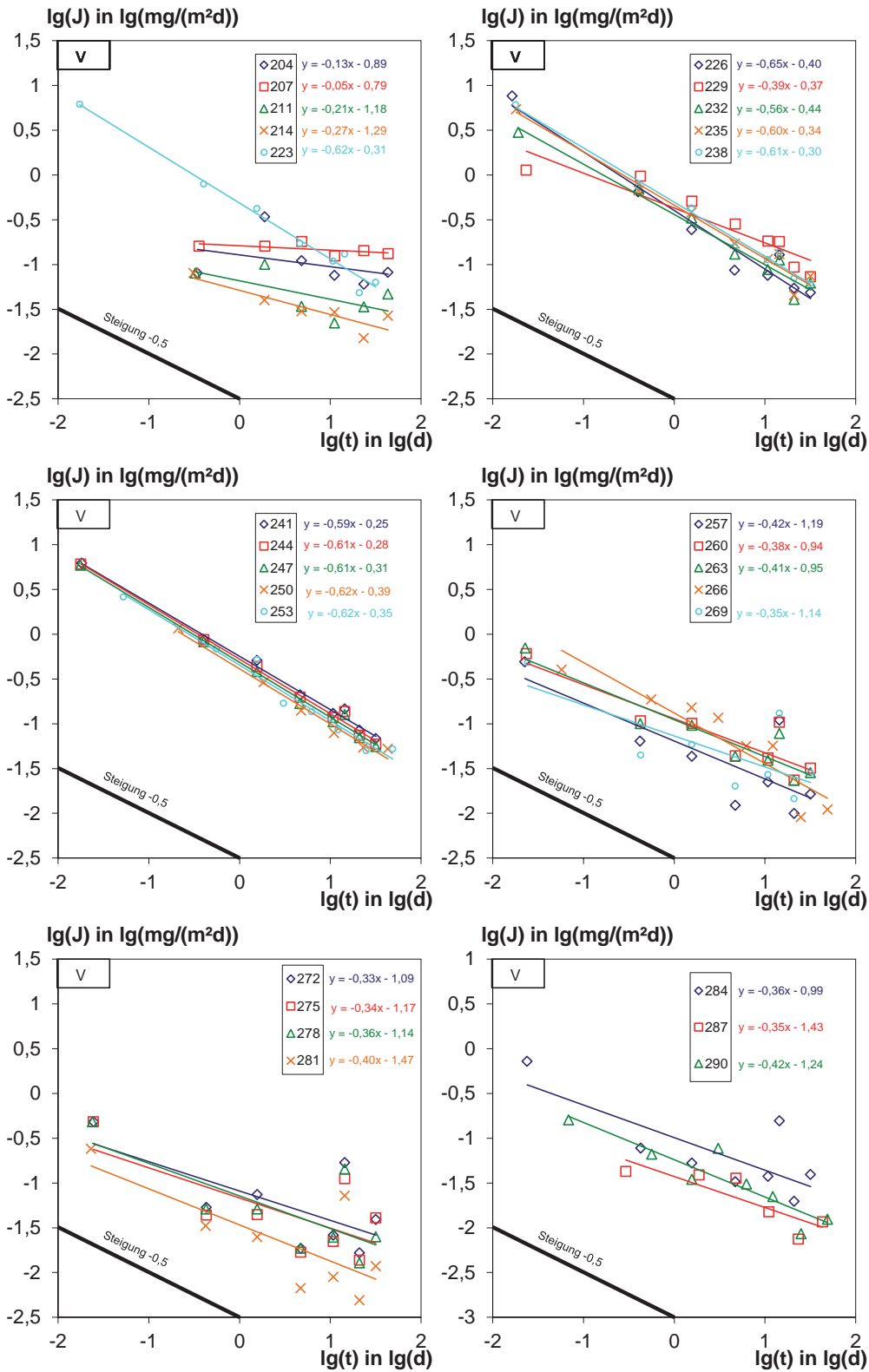
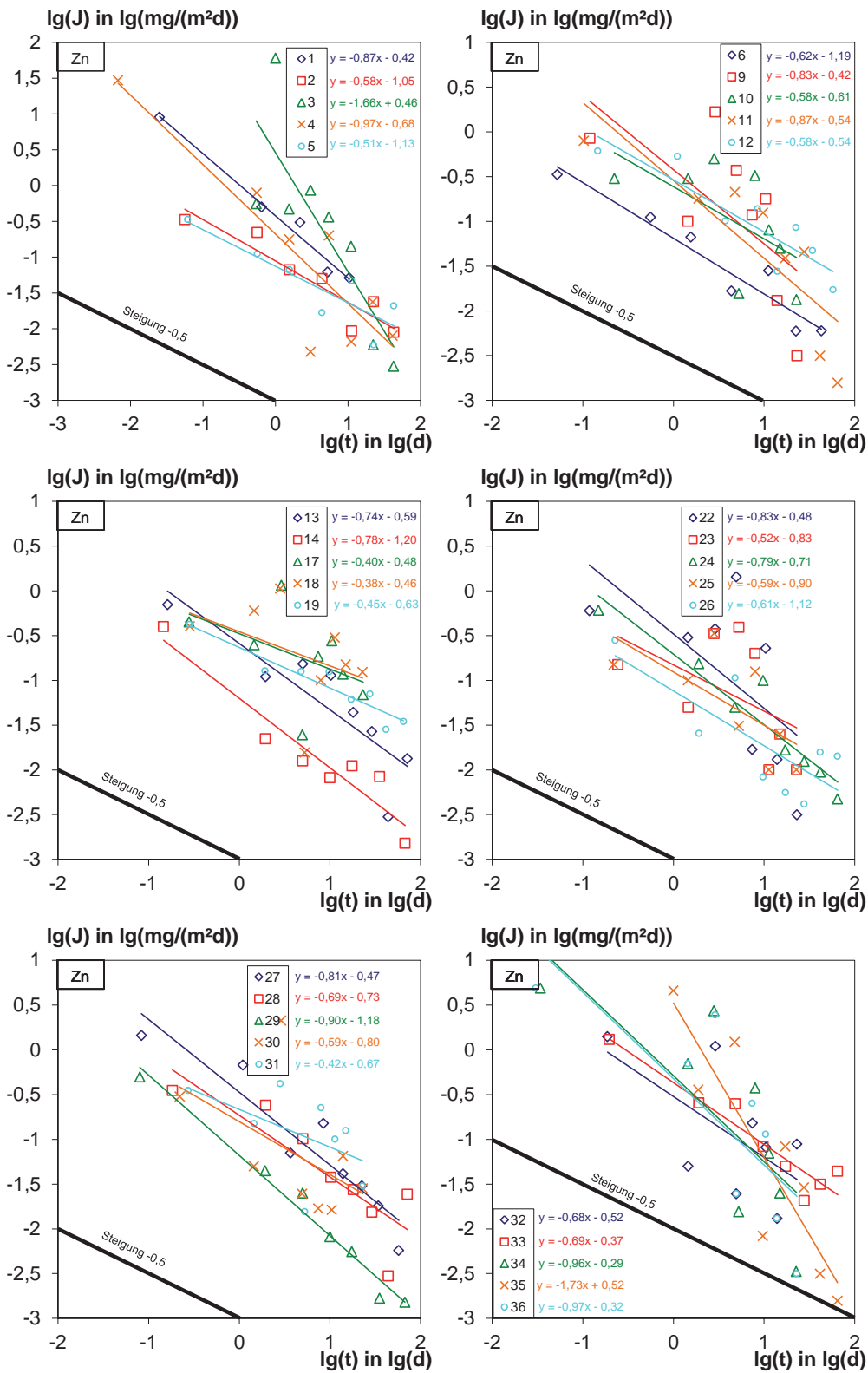


Bild B13: Fortsetzung 2



**Bild B14:** Darstellung der Auslaugkinetik von Zink

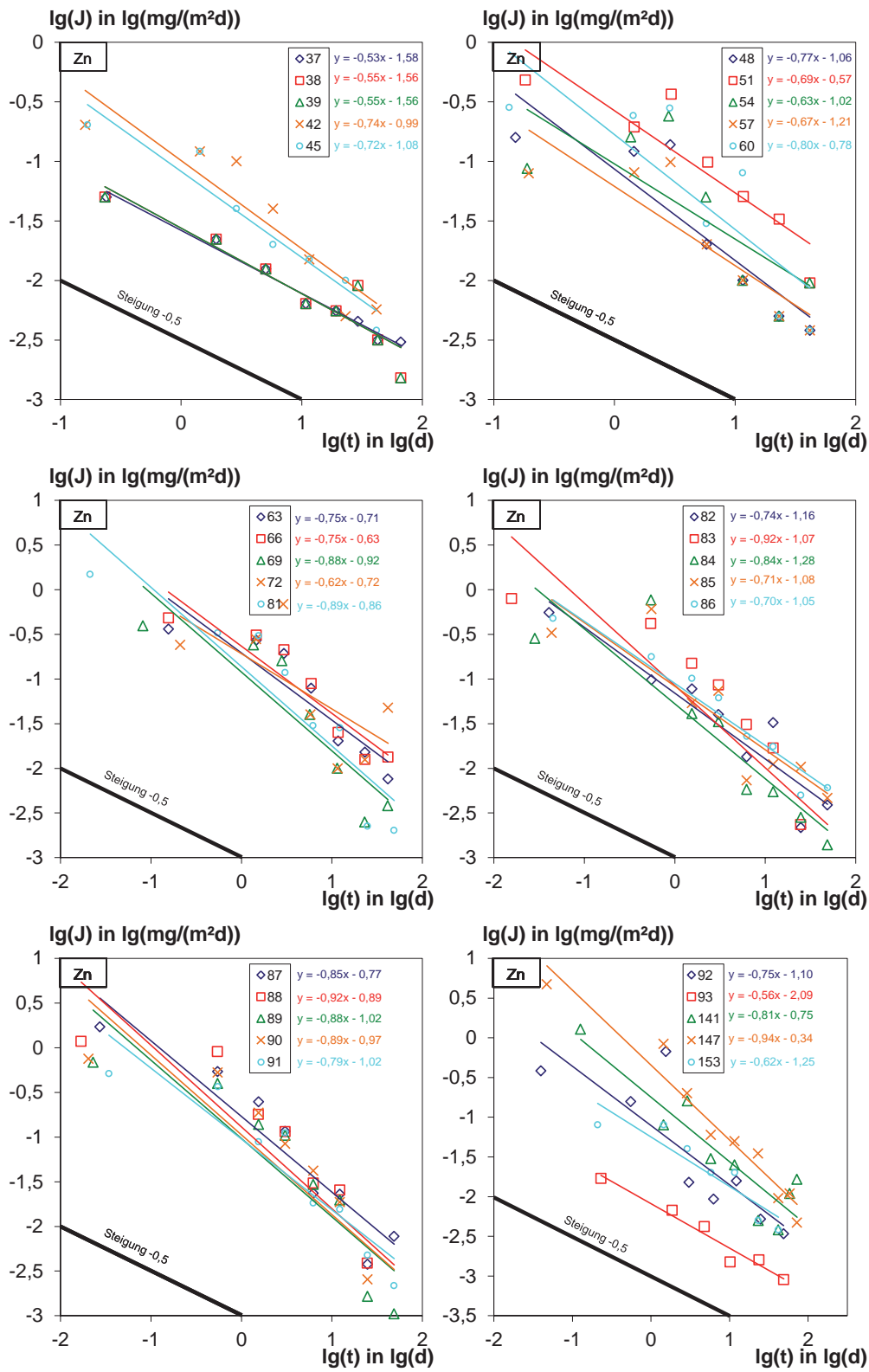


Bild B14: Fortsetzung 1

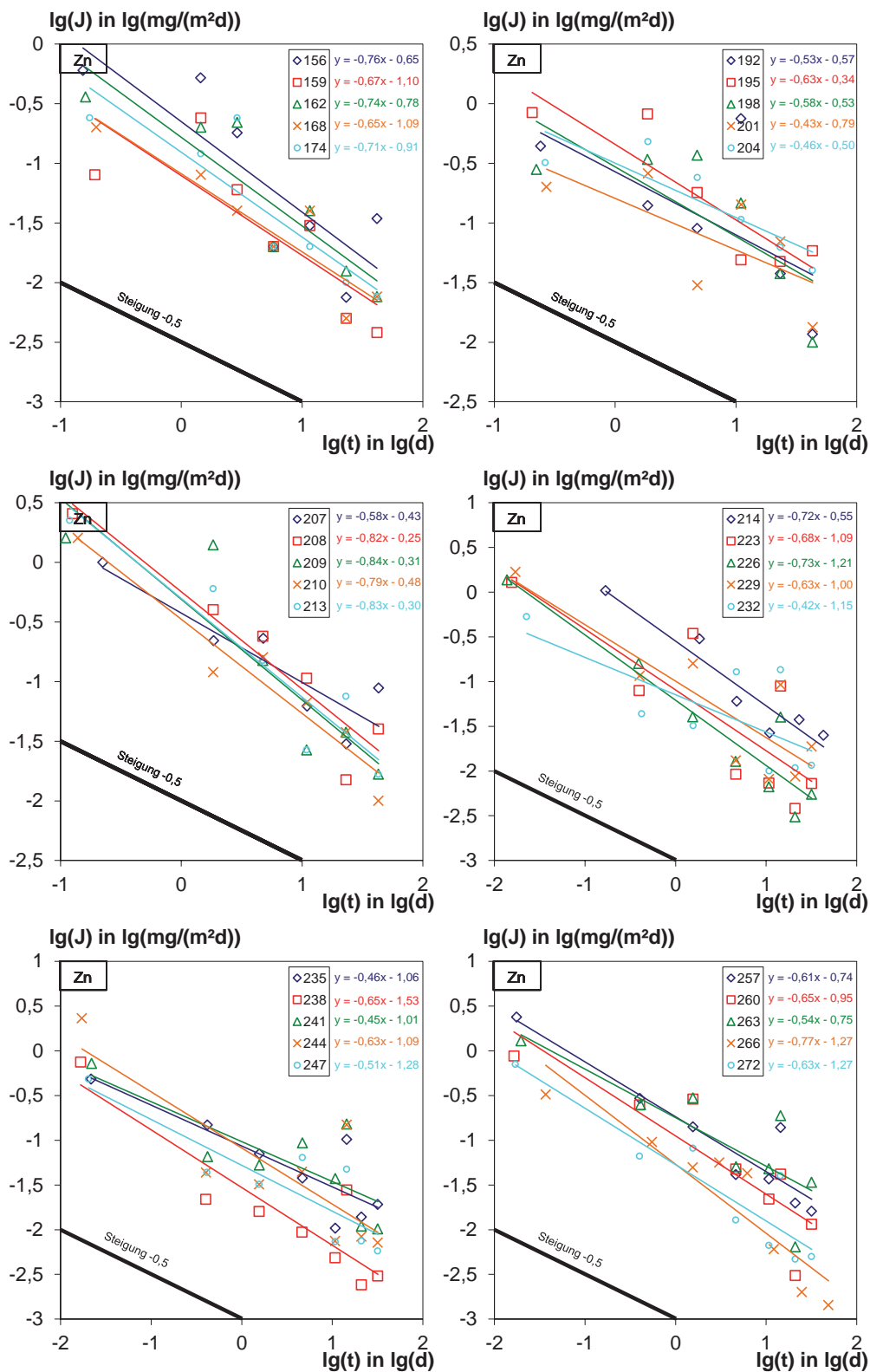


Bild B14: Fortsetzung 2